



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

Institut für Reaktorbauelemente

**Untersuchung
eines DUPLEX-Spaltrohres
in EVA I**

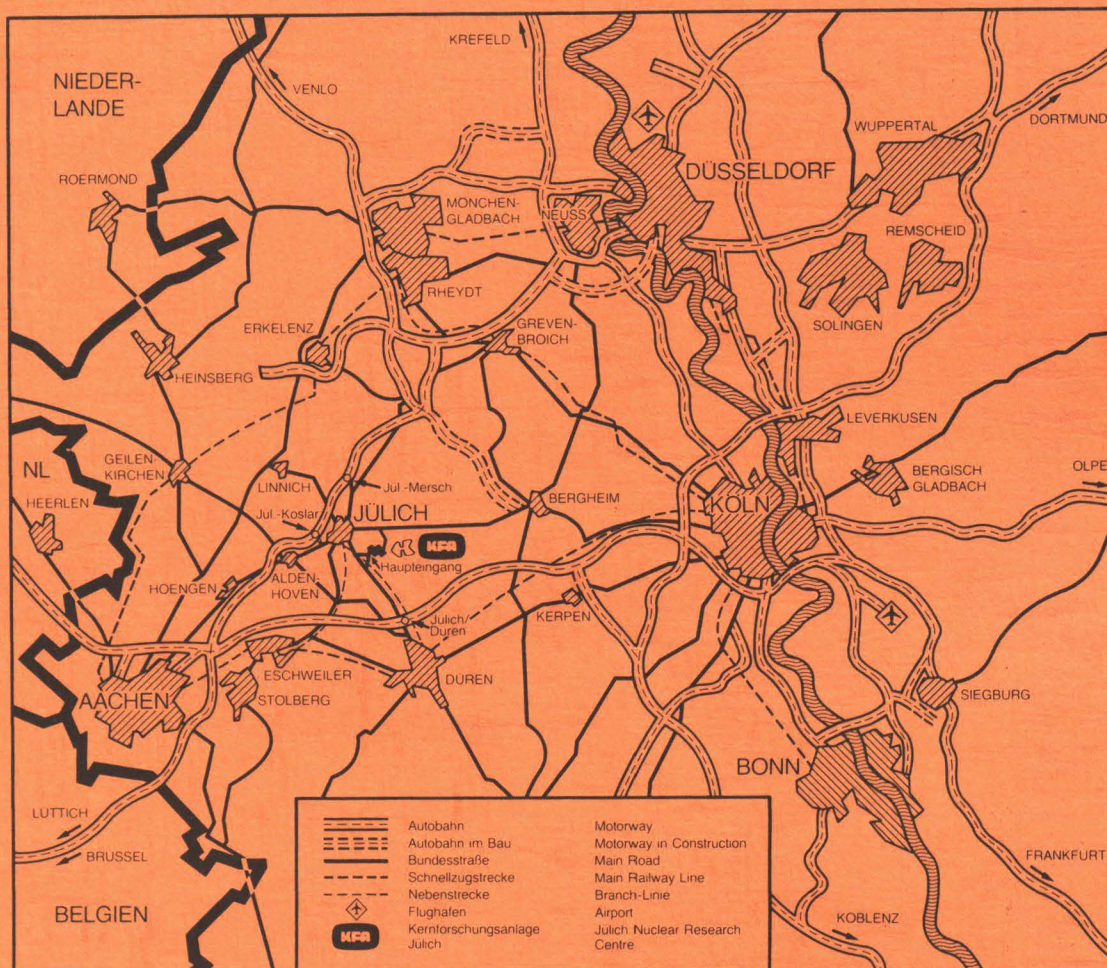
von

H. Fedders, E. Riensche

Jül - Spez - 179

November 1982

ISSN 0343-7639



Als Manuskript gedruckt

Spezielle Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 179

Institut für Reaktorbauelemente Jül - Spez - 179

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 02461/610 · Telex: 833556 kfa d

Untersuchung eines DUPLEX-Spaltrohres in EVA I

von

H. Fedders, E. Riensche

INVESTIGATION OF A DUPLEX-REFORMER TUBE IN EVA I

BY

H. FEDDERS

E. RIENSCHKE

Abstract:

In EVA I a double walled reformer tube (duplex tube) was investigated. The main question concerned the heat transfer in the gap between outer and inner wall. Starting with the measured helium and process gas temperatures and the heat fluxes the temperatures and heat transfer coefficients of the gap could be evaluated by means of well known heat transfer correlations. The measured gap width reached values up to 2 mm. Thereby calculated heat transfer coefficients amount to about $1300 \text{ W/m}^2\text{K}$ in good agreement with the measured values.

The special construction of the duplex tube prevents largely the hydrogen permeation through the outer tube wall into the helium system. The hydrogen enrichment of the helium flowing through the gap was measured gaschromatographically. The hydrogen permeation rate through the inner tube wall decreased within a few days by more than one order of magnitude in agreement with present results on tube segments.

UNTERSUCHUNG EINES
DUPLEX-SPALTROHRES
IN EVA I

VON

H. FEDDERS
E. RIENSCHÉ

Kurzfassung:

In der EVA I wurde ein doppelwandiges Spaltrohr (DUPLEX-Rohr) untersucht. Die zentrale Frage betraf hierbei den Wärmeübergang im Spalt zwischen Außen- und Innenwand. Ausgehend von den gemessenen Temperaturen des Heliums und Prozeßgases und den Wärmestromdichten konnten die Temperaturen und Wärmeübergangszahlen des Spaltes mit Hilfe bekannter Wärmeübergangsbeziehungen ermittelt werden. Die gemessenen Spaltweiten betrugen bis zu 2 mm. Damit berechnete Wärmeübergangszahlen betragen ca. $1300 \text{ W/m}^2\text{K}$ und stimmen mit den gemessenen gut überein.

Die spezielle Konstruktion des Duplex-Rohres verhindert weitgehend den H_2 -Durchtritt durch das äußere Rohr ins Helium-System. Die Anreicherung des Helium-Spülgases im Spalt mit Wasserstoff wurde gaschromatographisch registriert. Der H_2 -Permeationsstrom durch das innere Rohr sank innerhalb weniger Tage um mehr als eine Größenordnung in Übereinstimmung mit vorliegenden Ergebnissen an Rohrproben.

Diese Arbeit ist im Rahmen der Zusammenarbeit zwischen der Kernforschungsanlage Jülich GmbH - Projektleitung Nukleare Fernenergie - und der General Electric Company-Advanced Reactor Systems Department, Sunnyvale California, entstanden.

<u>INHALTSVERZEICHNIS</u>	<u>Seite:</u>
1. Einleitung und Problemstellung	1
2. Das DUPLEX-Rohr	3
2.1 Fertigungstests mit Proberohren	3
2.2 Werkstoff und äußere geometrische Abmessungen	3
3. Versuchsanordnung und -durchführung in EVA I	4
3.1 Versuchsanordnung	4
3.2 Meßinstrumentierung	4
3.3 Durchgeführtes Versuchsprogramm	5
4. Meßwertkontrollen	5
4.1 Massenbilanzen und C- und N-Atombilanzen Eintritt/ Austritt	5
4.2 C:H:O:N-Verhältnis Eintritt/Meßebenen	6
4.3 Wärmebilanzen Helium und innere Rückführung/ Prozeßgas	7
4.4 Kontrolle der Prozeßgastemperatur am Schüttungsaus- tritt	7
5. Ermittlung der Wärmeübergangszahlen des DUPLEX-Rohrspaltes aus den gemessenen Größen	9
5.1 Helium- und Prozeßgastemperaturen und Wärmestromdichten	9
5.2 Bekannte Wärmeübergangsbeziehungen für die Wärmetrans- portschritte beidseitig des DUPLEX-Rohrspaltes	10
5.2.1 Wärmeübergang Helium-Außenwand	10
5.2.2 Wärmeübergang Innenwand-Prozeßgas	12
5.2.3 Wärmetransport in der Innen- und Außenwand	13
5.3 Temperaturen der Innen- und Außenwand, Temperaturabfall im Spalt	14
5.4 Experimentell ermittelte Wärmeübergangszahlen des Spaltes	15

6.	Berechnung der Wärmeübergangszahlen des DUPLEX-Rohrspaltes mit den gemessenen Spaltweiten	15
6.1	Nach dem Versuch gemessene Spaltweiten	15
6.2	Spaltaufweitung im heißen Zustand	16
6.3	Berechnung eines nur noch von der Rohrlänge abhängigen mittleren Wärmeleitungsanteils	17
6.4	Wärmestrahlungsanteil	17
6.5	Die berechneten Wärmeübergangszahlen des Spaltes	18
7.	Schlußfolgerungen aus Messung und Berechnung des Wärmetransportes im DUPLEX-Rohrspalt	19
7.1	Vergleich von berechneten und gemessenen Wärmeübergangszahlen des DUPLEX-Rohrspaltes	19
7.2	Ursachen des stark erhöhten Wärmetransportwiderstandes	20
7.3	Die Einbuße in der Prozeßgastemperatur	21
7.4	Verbesserungsmöglichkeiten zur Verringerung des Temperaturabfalls	21
8.	Wasserstoffpermeation durch das Innenrohr	22
8.1	Meßprinzip	22
8.2	Versuchsergebnisse	24
8.3	Vergleich mit Labormessungen	28
9.	Zusammenfassung	31
10.	Literatur	34
	Abbildungen	37
	Fotos	75
	Tabellen	83

1. Einleitung und Problemstellung

Die Wasserstoffdurchlässigkeit metallischer Legierungen ist eines der Probleme, die beim Einsatz von Hochtemperaturreaktoren zur Bereitstellung nuklearer Prozeßwärme auf hohem Temperaturniveau von etwa 950 °C auftreten.

Einen Ansatz zur Lösung des Wasserstoff- und Tritiumproblems zeigt die Entwicklung eines doppelwandigen innengekühlten Reformerrohres (Duplex-Rohr) auf. Durch die Verwendung von Duplex-Rohren kann sowohl die Wasserstoff- als auch die Tritiumpermeation ins Primär-Helium bzw. Prozeßgas wesentlich herabgesetzt werden. Die Bestückung eines RSO mit Duplex-Rohren stellt somit bei Konzeption einer Nuklearen Prozeßwärme-Anlage eine Alternativlösung zum IHX dar (Abb. 1).

Nachteilig ist ein höherer Temperaturabfall Helium-Prozeßgas. Wie die schematische Darstellung in Abb. 2a erkennen läßt, ist die Spaltweite von entscheidender Bedeutung. Da der von der Spaltweite unabhängige Wärmetransport mittels Wärmestrahlung sehr gering ist, muß für einen guten Wärmetransport durch das Helium-Spülgassystem im Spalt gesorgt werden. Bei den geringen Strömungsgeschwindigkeiten ist nur die molekulare Wärmeleitung in Betracht zu ziehen (hierzu siehe z.B. /9/). Für eine typische Wärmestromdichte von 50 kW/m² ergibt sich die folgende Abschätzung

$$\begin{array}{ll} \text{Spaltweite } s = 1 \text{ mm:} & \Delta T_{\text{Spalt}} = 100 \text{ grad} \\ \text{Spaltweite } s = 0,1 \text{ mm:} & \Delta T_{\text{Spalt}} = 10 \text{ grad} \end{array}$$

Unvermeidbar ist eine Spaltaufweitung im heißen Betriebszustand.

Diese Abschätzung zeigt, daß bei der Fertigung von DUPLEX-Rohren Spaltweiten in der Größenordnung von 0,1 mm angestrebt werden müssen.

Aufgrund des Vertrages zwischen KFA und GE sollte ein doppelwandiges Spaltrohr, für dessen Fertigung GE verantwortlich war, auf seine verfahrenstechnische Verwendbarkeit in einer Nuklearen Prozeßwärme-Anlage untersucht werden (Abb. 3). Beim Test des Duplex-Rohres in der Pilotanlage EVA I (Einzelrohr-Versuchs-Anlage) des Instituts für Reaktorbauelemente der KFA Jülich im Mai und Juni 1979 wurde ein umfangreiches Versuchsprogramm abgewickelt.

Ein wesentliches Versuchsziel war die experimentelle Ermittlung des Wärmeüberganges im DUPLEX-Rohrspalt zwischen Außen- und Innenwand. Aus apparativen Gründen war es allerdings nicht möglich, eine so umfangreiche Meßinstrumentierung zu installieren, daß die Wärmeübergangszahlen des Spaltes allein mit Hilfe der bei diesem Versuch erfaßten Meßgrößen hätten bestimmt werden können. Insbesondere konnten die Temperaturen der Spaltberandungen (Innenoberfläche der Außenwand und Außenoberfläche der Innenwand) nicht gemessen werden. Dies erfordert eine Vorgehensweise, bei der ausgehend von den gemessenen Helium- und Prozeßgastemperaturen und den ermittelten Wärmestromdichten Helium-Prozeßgas unter Hinzuziehung von Wärmeübergangsbeziehungen die Temperaturabfälle

- Helium-Außenoberfläche der Außenwand
- in der Wand des äußeren Rohres
- in der Wand des inneren Rohres
- Innenoberfläche der Innenwand-Prozeßgas

bestimmt werden.

Die Berechnung der Temperaturdifferenz Wand-Prozeßgas erfordert die Kenntnis der Wärmeübergangszahlen Wand-Prozeßgas α_{W-PG} . In der Literatur angegebene Wärmeübergangsbeziehungen liefern sehr unterschiedliche Werte. Aus diesem Grunde wurden zur Ermittlung von α_{W-PG} die Daten eines EVA I-Versuchs mit einwandigem Spaltrohr herangezogen /1/. Ausgewählt wurde ein Versuch mit einer Anordnung des Spaltrohrinnenraumes, die derjenigen beim DUPLEX-Rohr-Versuch weitestgehend ähnlich war. Bei diesem im März 1978 durchgeführten Versuch wurde derselbe Katalysator verwendet wie später beim DUPLEX-Rohr-Versuch und ebenfalls eine gewendelte innere Rückführung.

Mit den auf diesem experimentellen Wege gewonnenen Wärmeübergangszahlen sollten dann die Vorstellungen über die Wärmetransportmechanismen im DUPLEX-Rohrspalt (Wärmestrahlung, molekulare Wärmeleitung des Heliums) auf ihre Richtigkeit überprüft werden. Unter anderem aus diesem Grunde wurde das DUPLEX-Rohr nach dem Versuch zerschnitten und die Spaltweiten gemessen. Damit war es möglich, die Wärmeübergangszahlen des Spaltes auch zu berechnen, so daß Theorie und Experiment auf ihre Übereinstimmung geprüft werden konnten.

Die spezielle Konstruktion des Duplex-Rohres erlaubte darüber hinaus Messungen und Experimente zur Wasserstoffpermeation. Hierbei kann das innere Rohr als repräsentativ für ein einwandiges Reformerrohr angesehen werden. Eine Spaltspülung eröffnete erstmals die Möglichkeit, zur Bestimmung der H_2 -Permeation in der EVA I ein direktes Meßverfahren anzuwenden. Beim Einsatz von einwandigen Reformerrohren in früheren Versuchen konnte die in den primären Heliumkreislauf eingedrungene Wasserstoffmenge aus meßtechnischen und apparativen Gründen nur auf indirekte Weise ermittelt werden /2/.

2. Das DUPLEX-Rohr

2.1 Fertigungstests mit Proberohren

Mit dem Ziel, ein Verfahren zur Fertigung eines über 10 m langen Duplex-Rohres zu entwickeln, wurde von General Electric zunächst eine Reihe von Versuchen mit kürzeren Rohren angestellt. Getestet wurde u.a. die Explosionsverformung bei

- einwandigen Rohren (0,61 m lang),
- Duplex-Rohren (0,61 m lang),
- Duplex-Rohren (3,05 m lang).

Durch mehrfache Explosionen konnten folgende Spaltweiten erreicht werden

- 0,03 bis 0,3 mm bei den 0,61 m langen Duplex-Rohren,
- 0,03 bis 0,1 mm bei den 3,05 m langen Duplex-Rohren.

Somit durfte erwartet werden, daß auch das 12 m lange DUPLEX-Rohr so gefertigt werden konnte, daß die Spaltweite 0,1 mm nicht wesentlich überschreitet.

2.2 Werkstoff und äußere geometrische Abmessungen

Das DUPLEX-Rohr ist aus Incoloy 800H gefertigt. Für die hier durchgeführte Versuchsauswertung wurden folgende Abmessungen zugrunde gelegt:

Katalysator-Schütthöhe	11,869	m
Außendurchmesser Außenwand	129,4	mm
Innendurchmesser Außenwand	110,23	mm
Außendurchmesser Innenwand	109,57	mm
Innendurchmesser Innenwand	90,4	mm

3. Versuchsanordnung und -durchführung in EVA I

3.1 Versuchsanordnung

Eine detaillierte Beschreibung der EVA I wird in /1/, /12/ gegeben.

Das im Druckbehälter D-1 der EVA I eingebaute DUPLEX-Rohr (siehe Abb. 2b sowie 25) ist mit einem Katalysator (G56H, Girdler Südchemie) in Form von Raschigringen ($d = h = 10 \text{ mm} = d_p$, $d_i = 4 \text{ mm}$) gefüllt. Die Schütthöhe beträgt 11,87 m.

Besonderes Konstruktionsmerkmal ist die gewendelte innere Rückführung. Das Rohr der Rückführungswendel hat einen Außendurchmesser von ca. 25 mm. Der Zwischenraum zwischen Spaltrohrinnenwand und Rückführung beträgt nur ca. 3 mm.

3.2 Meßinstrumentierung

Zur möglichst genauen thermodynamischen Erfassung eines Betriebszustandes sind das Helium- und das Prozeßgassystem mit einer umfangreichen Meßinstrumentierung ausgerüstet.

Die Heliummengenmessung erfolgt mittels einer Norm-Venturidüse. Die Messung der Mengenströme von Wasser und Erdgas am Eintritt in den D-1 erfolgt volumetrisch an der geeichten Dosierpumpe bzw. mit Hilfe einer Gasuhr. Die über jeweils einen Kalendermonat gemittelte Erdgasanalyse wird vom Erdgaslieferanten mitgeteilt.

Die Meßfühler (Thermoelemente, Druck- bzw. Analysenleitungen) im Spaltrohr sind an 4 Meßebenen im Abstand von ca. 4 m angebracht. Die Temperaturmessung ist sehr umfangreich. Gemessen werden die Temperaturen des Heliums im Ringspalt, der Spaltrohraußenwand, des Prozeßgases in der Schüttung und des Produktgases in der inneren Rückführung. Die meisten Meßstellen sind

mehrfach mit Thermoelementen bestückt, so daß die Versuchsauswertung bei Ausfall einzelner Thermoelemente durch Wahl der intakten nicht beeinträchtigt wird.

3.3 Durchgeführtes Versuchsprogramm

Der gesamte im Mai und Juni 1979 durchgeführte Versuch umfaßte ein umfangreiches Versuchsprogramm. Von der Vielzahl aufgenommener Meßpunkte (MP 448-483) wurden 11 Meßpunkte der Serie 2 (Juni) weiter ausgewertet (siehe Abschnitt 4). Bei diesen Meßpunkten hatten die charakteristischen Betriebsparameter folgende Werte:

Heliumdruck	ca. 40	bar
Heliumtemperatur an Ebene 4	ca. 950	°C (sowie 900°C u. 920°C)
Erdgasmengenstrom	ca. 100-150	Nm ³ /h
H ₂ O : CH ₄ -Molverhältnis	ca. 2-4	
Prozeßgasdruck an Ebene 1	ca. 35	bar
Prozeßgastemperatur an Ebene 1	ca. 500	°C
Prozeßgastemperatur an Ebene 4	ca. 810-825	°C (sowie 750 °C)

Dabei ergaben sich Heliummassenströme zwischen 0,17 und 0,44 kg/s.

4. Meßwertkontrollen

Die bisherigen EVA I-Experimente haben gezeigt, daß die tolerierten Fehlergrenzen der Meßgrößen (Temperaturen, Gasanalysen, Drücke, Massenströme) immer wieder aufgrund verschiedener Ursachen (Ausfall von Thermoelementen, Leckage, Störungen im Analysensystem, Datenfehler bei der Versuchsauswertung) erheblich überschritten werden. Mit Hilfe von Bilanzkontrollen können derartige Meßpunkte ausgesondert werden.

4.1 Massenbilanzen und C- und N-Atombilanzen Eintritt/Austritt

Zur Kontrolle der Mengenmessung wurde bei 3 Meßpunkten eine vollständige Mengenbilanzierung durchgeführt. Dazu wurden neben der Messung der zugeführten Gas- und Wassermenge die trockene Produktgasmenge und die Kondenswassermenge am Austritt gemessen. Das Verhältnis der Massenströme wurde zu

$$\frac{\dot{M}_{\text{Ein}}}{\dot{M}_{\text{Aus}}} = 1,03$$

bestimmt. Dieser Wert liegt im Bereich eines tolerierbaren Fehlers von $\pm 2\%$.

Für sämtliche Meßpunkte ist die Kontrolle der C- und N-Atomströme möglich. Abbildung 4 zeigt das Verhältnis des durch die Produktgasdüse fließenden C- bzw. N-Atomstroms zu dem durch die Gasuhr am Eintritt fließenden Atomstrom. Man erkennt, daß sowohl die C- als auch die N-Atom Bilanz für Meßpunkt 481 den aufgrund der tolerierten Meßfehler erlaubten Bereich um etwa das doppelte überschreitet. Deshalb werden die für diesen Meßpunkt ermittelten Größen in dieser Arbeit nicht verwendet.

4.2 C:H:O:N-Verhältnis Eintritt/Meßebenen

Das C:H:O:N-Verhältnis am Eintritt wird festgelegt durch die Meßgrößen

- H_2O -Mengenstrom,
- Erdgas-Mengenstrom,
- Erdgasanalyse.

Das C:H:O:N-Verhältnis an den Meßebenen wird ermittelt aus der gemessenen

- trockenen Gasanalyse

unter rechnerischer Addition von H_2O in einer solchen Menge, daß im Falle

a) das C:O-Verhältnis gleich demjenigen am Eintritt wird

b) das H:O-Verhältnis gleich demjenigen am Eintritt wird,

Für beide Fälle werden im EVA I-Auswerteprogramm die Abweichungen der C-, H-, O- und N-Atombrüche von denjenigen am Eintritt ermittelt.

Einen schnelleren Überblick kann man sich verschaffen, wenn man die für die beiden Fälle ermittelten H_2O -Molenbrüche vergleicht. Eine Fehlersensitivitätsanalyse für einen typischen Reaktionsablauf lieferte die zulässigen Bereiche:

$$\Delta x_{\text{H}_2\text{O}} = 1 \text{ mol\% an Ebene 2}$$

$$\Delta x_{\text{H}_2\text{O}} = 1,5 \text{ mol\% an Ebene 3}$$

$$\Delta x_{\text{H}_2\text{O}} = 2 \text{ mol\% an Ebene 4}$$

Wie man leicht einsieht, sind die hier betrachteten Differenzen bei fehlerfreien Analysen Null, hängen dann also nicht von den Mengenströmen ab (der Anteil des reagierten Wassers wird bei fehlerfreien Analysen in beiden Fällen richtig berechnet). Abbildung 5 zeigt, daß die Analysengenauigkeit bei allen Meßpunkten zufriedenstellend ist.

4.3 Wärmebilanzen Helium und innere Rückführung/Prozeßgas

Bei der Wärmebilanz werden verglichen

- die vom Helium und innerer Rückführung abgegebene Wärme $\dot{Q}_{\text{He}} + \dot{Q}_{\text{IR}}$ mit
- der vom Prozeßgas aufgenommenen Wärme \dot{Q}_{PG} .

Abbildung 6 zeigt die Gesamtwärmebilanz zwischen Ebene 1 und 4 und die Teilwärmebilanzen zwischen den benachbarten Ebenen, die auch eine Kontrolle der Meßgrößen an Ebene 2 und 3 ermöglichen. Man erkennt, daß der tolerierte Bereich bei keinem Meßpunkt überschritten wird.

4.4 Kontrolle der Prozeßgastemperatur am Schüttungsaustritt

Die Produktgasrückführung durch das vom Prozeßgas umströmte Pigtail bedingt eine Besonderheit bei der Wärmebilanz. Eine Änderung der Prozeßgastemperatur an Ebene 4, die mit der Rückführungstemperatur an Ebene 4 identisch ist, beeinflußt in gleichem Maße die vom Prozeßgas aufgenommene Wärme \dot{Q}_{PG} wie die von der inneren Rückführung abgegebene Wärme \dot{Q}_{IR} , da sich die fühlbare Wärme in beiden Fällen um den gleichen Betrag ändert. Deshalb kann ein Fehler in der Prozeßgastemperatur an Ebene 4 mit Hilfe der Wärmebilanz nicht aufgedeckt werden.

Eine Kontrollmöglichkeit ist jedoch auch hier gegeben. Wie Simulationsrechnungen gezeigt haben, steht die Temperatur an Ebene 4 (hier mit T_4 bezeichnet) in Relation zu den Rückführungstemperaturen an Ebene 2 und 3 (T_2 und T_3). Mit einer Abweichung $\Delta T_4 = T_4^{\text{intp}} - T_4$ von nur 0 bis -3 grd (bis auf eine unsystematische einmalige Abweichung von -7 grd bei minimalem Durchsatz) liegt die parabolisch interpolierte Schätztemperatur T_4^{intp} bei T_4 . Wie in Abbildung 7 dargestellt, führen die für das mittlere und heiße Drittel des Spaltrohres gemachten Näherungen

$$\frac{dT_{\text{IR}}}{dz} \sim \Delta T, \quad \Delta T = T_{\text{IR}} - T_{\text{PG}} \quad (1)$$

und

$$\Delta T \sim L - z \quad (2)$$

mittels Integration zu dem einfachen parabolischen Beobachtermodell für die Prozeßgastemperatur an Ebene 4 $T_{\text{PG}}(L) = T_{\text{IR}}(L)$

$$\Delta T_{\text{IR}}(z) \sim (L-z)^2, \quad (3)$$

wobei

$$\Delta T_{\text{IR}}(z) = T_{\text{IR}}(L) - T_{\text{IR}}(z) \quad (4)$$

Der geschätzte Temperaturabfall in der inneren Rückführung bis Ebene 3 $\Delta T_{\text{IR}}^{\text{intp}}$ (Eb. 3) ergibt sich dann aus

$$\frac{x}{x+a} = \frac{1}{4} \quad (5)$$

so daß

$$x = \frac{a}{3} \quad (6)$$

wobei

$$x = \Delta T_{\text{IR}}^{\text{intp}} \text{ (Eb. 3)} \quad (7)$$

und

$$a = T_{\text{IR}} \text{ (Eb. 3)} - T_{\text{IR}} \text{ (Eb. 2)} \quad (8)$$

Man erkennt in Abbildung 7, daß die gemessenen Temperaturen an Ebene 4 um höchstens 2 grad von den geschätzten abweichen.

5. Ermittlung der Wärmeübergangszahlen des DUPLEX-Rohrspaltes aus den gemessenen Größen

5.1 Helium- und Prozeßgastemperaturen und Wärmestromdichten

In Abbildung 8 sind für den Meßpunkt 476 diejenigen Meßgrößen dargestellt, die die Basis für die Berechnung des Temperaturabfalls und der Wärmeübergangszahlen im DUPLEX-Rohrspalt darstellen.

Da die Temperaturen der Außenwand außen an Meßebene 1 und 4 starken Randstörungen unterliegen /1/ und das an Ebene 3 installierte Thermoelement als defekt erkannt worden war, mußte auf die Heliumtemperaturen, die einen Wärmetransportschritt weiter vom Spalt entfernt sind, zurückgegriffen werden. Auf der anderen Seite des Spaltes wird von den Prozeßgastemperaturen ausgegangen.

Abbildung 8 zeigt außerdem die für die 3 Rohrabschnitte ermittelten mittleren Wärmestromdichten \dot{q}_{He} durch die DUPLEX-Rohrwand. Bezugsfläche ist hier die Innenoberfläche der Innenwand. Der Wärmestrom ist gleich der Wärmeabgabe des Heliums \dot{Q}_{He} , die über die Wärmekapazität c_p ermittelt wird

$$\dot{Q}_{He} = c_p \dot{M} \Delta T \quad (8b)$$

Darüberhinaus sind dargestellt die von der inneren Rückführung gelieferte Wärmestromdichte \dot{q}_{IR} , die Kontrollwerte der Wärmebilanz $\dot{q}_{PG}/(\dot{q}_{He} + \dot{q}_{IR})$ und die Aufteilung in Aufheiz- und Reaktionswärme.

Hierbei ist zu beachten, daß die lineare Interpolation der Prozeßgastemperatur zwischen Ebene 1 und 2 eine grobe Vereinfachung darstellt, insbesondere weil im ersten Drittel der Reaktionsstrecke die Umsetzung der höheren Kohlenwasserstoffe erfolgt. Da für die Wärmestromdichte nur ein Mittelwert zur Verfügung steht, kann demzufolge das Wärmetransportverhalten des Spaltes am Rohranfang nicht aus den Experimenten ermittelt werden.

5.2 Bekannte Wärmeübergangsbeziehungen für die Wärmetransportschritte beidseitig des DUPLEX-Rohrspaltes

Um aus den gemessenen Temperaturen des Heliums und Prozeßgases und den Wärmestromdichten die Temperaturen der Spalt-Berandungen (Außenwand innen und Innenwand außen) ermitteln zu können, müssen die Wärmeübergangsbeziehungen für die folgenden 4 Wärmetransportschritte bekannt sein

- 1) Helium-Außenwand außen
- 2) Innenwand innen - Prozeßgas
- 3,4) Wärmetransport durch die Außen- und Innenwand.

Während bei den Schritten 1 und 3, 4 auf Beziehungen aus der Literatur zurückgegriffen werden konnte, weichen die für den Wärmetransport in Festbetten angegebenen Beziehungen stark voneinander ab. Für den Wärmeübergang Wand-Schüttung wird deshalb die in /1/ angegebene Beziehung verwendet, die bei dem EVA I-Vergleichsversuch mit einwandigem Spaltrohr gefunden wurde.

5.2.1 Wärmeübergang Helium-Außenwand

Die Wärmeübergangszahl α_{He} für den Wärmetransport vom Helium an die Außenwand setzt sich aus einem konvektiven und einem Strahlungsanteil zusammen.

$$\alpha_{\text{He}} = \alpha_{\text{He}}(\text{konv.}) + \alpha_{\text{He}}(\text{Strahlung}) \quad (9)$$

Für den konvektiven Wärmeübergang wurde eine in /3/ diskutierte Beziehung verwendet

$$\alpha_{\text{He}}(\text{konv.}) = \text{Nu} \cdot \lambda / d_h \quad (10)$$

$$\text{Nu} = 0,024 \text{ Re}^{0,8} \text{ Pr}^{0,44} \quad (11)$$

$$\text{Re} = d_h w \varrho / \eta \quad (12)$$

$$d_h = D_i (\text{Hüllrohr}) - D_a (\text{DUPLEX-Rohr}) \quad (13)$$

Eine von DITTUS-BOELTER /4/ angegebene Beziehung

$$\text{Nu} = 0,023 \text{ Re}^{0,8} \text{ Pr}^{0,4} \quad (14)$$

weicht nur wenig von der hier benutzten ab.

Nach GRÜBER-ERK /5/ gilt für den Wärmestrahlungsanteil

$$\alpha_{\text{He}}(\text{Strahlung}) = S \cdot 4 \cdot \bar{T}^3 \quad (15)$$

wobei
$$\bar{T} = (T_{\text{He}} + T_{\text{Wa}})/2 \quad (16)$$

$$S = \frac{1}{\frac{1}{\epsilon \sigma_s} + \frac{D_a(\text{Spaltrohr})}{D_i(\text{Hüllrohr})} \left(\frac{1}{\epsilon \sigma_s} - \frac{1}{\sigma_s} \right)} \quad (17)$$

$$\epsilon = 0,613$$

$$\sigma_s = 5,775 \cdot 10^{-8} \text{ W/m}^2 \text{K}^4$$

Das Emissionsverhältnis ϵ ist für die hohen Temperaturen bis 950 °C nicht genau bekannt. Da die Temperaturabhängigkeit jedoch i.a. schwach ist, erscheint es berechtigt, den für oxidiertes Eisen und eine Temperatur von 80 °C in /5/ angegebenen Wert zu benutzen. Die Berechnung erfolgt iterativ, da die Außenwandtemperatur T_{Wa} und somit auch die mittlere Temperatur T zunächst nicht genau bekannt sind. Die Iteration startet mit $T_{\text{Wa}} = T_{\text{He}} - q_{\text{He}}/\alpha_{\text{He}}(\text{konv.})$.

In Abbildung 9 sind die Wärmeübergangszahlen für den Meßpunkt 476 als Beispiel über der Rohrlänge dargestellt. Der konvektive Wärmetransport stellt den größten Anteil dar und ändert sich kaum über der Rohrlänge. Der temperaturabhängige Strahlungsanteil trägt am kalten Rohrende 17% und am heißen Rohrende 25% zur Wärmeübergangszahl α_{He} bei.

Bezieht man die Wärmestromdichte einheitlich auf die Innenoberfläche der Innenwand, so sind die formelmäßig ermittelten Wärmeübergangszahlen mit einem entsprechenden Faktor (hier D_a/D_i) zu multiplizieren. Das hat den Vorteil, daß man dann diese bezogenen Wärmeübergangszahlen (bzw. deren Reziprokwerte) für die verschiedenen Wärmetransportschritte im Hinblick auf die jeweiligen Temperaturabfälle direkt miteinander vergleichen kann. Abbildung 9 zeigt, daß sich die α_{He} -Werte, die ca. 700 W/m²K betragen, bei Bezug auf die Innenwand auf ca. 1000 W/m²_iK erhöhen. Unter Einbeziehung aller Meßpunkte liegen die bezogenen α_{He} -Werte im Bereich zwischen 900 und 2000 W/m²_iK.

Die mit Hilfe von Gleichung (10) und (15) an Ebene 2 berechnete Außenwandtemperatur liegt im Mittel nur 3 grd höher als die gemessene. Somit dürfen die hier benutzten Wärmeübergangsbeziehungen als adäquat angesehen werden.

5.2.2 Wärmeübergang Innenwand-Prozeßgas

Zur Ermittlung der Wärmeübergangszahl α_{W-PG} für den Wärmetransport von der Innenwand an das Prozeßgas in der Schüttung wurden die Daten eines EVA I-Versuchs mit einwandigem Spaltrohr herangezogen. Ausgewählt wurde ein Versuch mit einer Anordnung des Spaltrohrinnenraumes, die derjenigen beim DUPLEX-Rohr-Versuch weitestgehend ähnlich war. Bei diesem im März 1978 durchgeführten Versuch wurde derselbe Katalysator verwendet und ebenfalls eine gewendelte innere Rückführung. Lediglich der Rohrrinnendurchmesser war etwas größer (110 im Vergleich zu 90 mm).

Die gemessenen Wärmeübergangszahlen α_{W-PG} konnten bis auf $\pm 5\%$ durch folgende Beziehung sehr genau beschrieben werden /1/ (Abbildung 10):

$$\alpha_{W-PG} = Nu \cdot (\lambda / d_p) \quad (18)$$

$$Nu = 0,26 (d_p/D_i)^{0,2} Re_p^{0,75} Pr^{0,4} \quad (19)$$

$$Re_p = w_{leer} d_p \rho / \eta \quad (20)$$

$$Pr = \eta c_p / \lambda \quad (21)$$

oder aufgelöst nach den einzelnen Einflußgrößen

$$\alpha_{W-PG} = 0,26 \frac{w_{leer}^{0,75} \rho^{0,75} \lambda^{0,6} d_p^{0,4}}{d_p^{0,05} D_i^{0,2} \eta^{0,35}} \quad (22)$$

Die Stoffwerte ρ , λ , c_p und η wurden dabei aus den für das wandferne Prozeßgas in der Schüttung gemessenen Größen bestimmt. w_{leer} bezeichnet die mittlere Gasgeschwindigkeit im katalysatorfrei gedachten Rohr.

Da die Prozeßgastemperaturen über 100 grd unter den Heliumtemperaturen liegen, ist Wärmestrahlung hier von geringerer Bedeutung als beim Helium. Aus diesem Grunde erschien es nicht erforderlich, eine Separation eines

Strahlungsanteils vorzunehmen.

Wie Abbildung 10 zu entnehmen ist, sind die Strömungsgeschwindigkeiten beim Vergleichsversuch geringer ($w_{\text{leer}} \leq 2,0$ m/s an Ebene 3), zumal die Meßpunkte mit höheren Strömungsgeschwindigkeiten wegen schlechter Bilanzen nicht herangezogen wurden. Für Meßpunkte des DUPLEX-Rohr-Versuchs erscheint jedoch eine Extrapolation bis zu Meßpunkten mit $w_{\text{leer}} = 3,3$ m/s an Ebene 3 genügend sicher.

In Abbildung 11 sind die Wärmeübergangszahlen für den Meßpunkt 476 dargestellt. Wie in /1/ diskutiert, läßt sich die starke Zunahme von $\alpha_{\text{W-PG}}$ um ca. 60% über der Rohrlänge der Zunahme der Strömungsgeschwindigkeit um ca. 100% infolge Temperaturanstieg und Volumenvergrößerung zuschreiben. Die $\alpha_{\text{W-PG}}$ -Werte liegen ebenso wie die α_{He} -Werte bei ca. $1000 \text{ W/m}_i^2\text{K}$. Unter Einbeziehung aller Meßpunkte liegen die $\alpha_{\text{W-PG}}$ -Werte im Bereich zwischen 800 und $2000 \text{ W/m}_i^2\text{K}$.

5.2.3 Wärmetransport in der Innen- und Außenwand

Für die Wärmeleitfähigkeit λ_{W} des Wandmaterials Incoloy 800H wurde eine Beziehung verwendet, mit der von der Firma WIGGINS angegebene Werte für Incoloy 800 zwischen 300 und 900 °C bis auf $\pm 2\%$ approximiert werden (Abbildung 12)

$$\lambda_{\text{W}} = 2454 + 1,67 (T/^{\circ}\text{C} - 800) \text{ W/m}^2(\text{K/cm}) \quad (23)$$

Hierbei wurde die Einheit so gewählt, daß die Zahlenwerte eine anschauliche Bedeutung haben (bei einer Wandstärke $x = 1$ cm einer ebenen Platte und $T = 800$ °C ist $\lambda_{\text{W}}/x = 2454 \text{ W/m}_i^2\text{K}$).

Für beide Wände des DUPLEX-Rohres zusammen ist $x \approx 2$ cm. Somit liegt λ_{W}/x bei Werten um ca. $1200 \text{ W/m}_i^2\text{K}$ und bei Bezug der Wärmestromdichte auf die Innenwand und Berücksichtigung der Rohrkrümmung bei ca. $1500 \text{ W/m}_i^2\text{K}$.

Allgemein gilt für ein Rohr mit Außendurchmesser D_1 und Innendurchmesser D_2

$$T_2 = T_1 - q_1 \frac{D_1 \ln(D_1/D_2)}{2 \lambda_{\text{W}}} \quad (24)$$

5.3 Temperaturen der Innen- und Außenwand, Temperaturabfall im Spalt-----

Mit den im vorangegangenen Abschnitt angegebenen Wärmeübergangsbeziehungen wurden aus den gemessenen Temperaturen des Heliums und Prozeßgases und den Wärmestromdichten die Temperaturen der Außen- und Innenoberfläche der DUPLEX-Rohrwand und die Temperaturen der Spalt-Berandungen (Außenwand innen und Innenwand außen) ermittelt. Allerdings ist für Meßebene 1 keine genaue Angabe möglich, da die für Ebene 1 ermittelte Wärmestromdichte nur einen groben Näherungswert darstellt (s. Abschnitt 5.1).

Das Ergebnis für Meßpunkt 476 ist in Abbildung 13 wiedergegeben. Die einzelnen Temperaturabfälle in der Rohrmitte betragen bei der Wärmestromdichte $q_{He} = 50 \text{ W/m}_i^2$

Helium-Wand	ca. 50 grd
Außenwand	15 grd
Spalt	<u>ca. 30 grd</u>
Innenwand	ca. 20 grd
<u>Wand-Prozeßgas</u>	<u>ca. 45 grd</u>
Helium-Prozeßgas	ca. 160 grd

MP 476 ist derjenige Meßpunkt, der mit $\Delta T_{Spalt} = \text{ca. } 30 \text{ grd}$ den kleinsten Temperaturabfall im Spalt aufweist (siehe Tabelle 1).

Der größte Temperaturabfall im Spalt (Rohrmitte) wurde mit $\Delta T_{Spalt} = 45 \text{ grd}$ bei Meßpunkt 472 ermittelt (Abb. 14). Die einzelnen Temperaturabfälle in der Rohrmitte betragen bei einer Wärmestromdichte $\dot{q}_{He} = \text{ca. } 60 \text{ W/m}_i^2$

Helium-Wand	ca. 40 grd
Außenwand	ca. 20 grd
Spalt	<u>45 grd</u>
Innenwand	ca. 25 grd
<u>Wand-Prozeßgas</u>	<u>45 grd</u>
Helium-Prozeßgas	ca. 175 grd

5.4 Experimentell ermittelte Wärmeübergangszahlen des Spaltes

Aus den gemessenen Wärmestromdichten \dot{q}_{He} und den ermittelten Temperaturabfällen ΔT_{Spalt} erhält man nun die Wärmeübergangszahlen α_{Spalt} für den mittels Wärmeleitung und -strahlung erfolgenden Wärmetransport durch den Spalt

$$\alpha_{\text{Spalt}} = \frac{\dot{q}_{\text{He}}}{\Delta T_{\text{Spalt}}} \quad (25)$$

\dot{q}_{He} ist hierbei auf die Außenoberfläche der Innenwand bezogen. Mit den in Tabelle 1 angegebenen Daten ergeben sich die in Abbildung 15 über der Rohrlänge dargestellten Wärmeübergangszahlen α_{Spalt} für die 7 Meßpunkte mit sicher erscheinenden $\alpha_{\text{W-PG}}$ -Werten. Als Mittelwerte ergeben sich (in Klammern die auf D_i bezogenen Werte)

Ebene 2:	$\alpha_{\text{Spalt}} = 1150 \text{ W/m}^2\text{K} \text{ (1390 W/m}_i^2\text{K)}$
Ebene 3:	$\alpha_{\text{Spalt}} = 1340 \text{ W/m}^2\text{K} \text{ (1620 W/m}_i^2\text{K)}$
Ebene 4:	$\alpha_{\text{Spalt}} = 1460 \text{ W/m}^2\text{K} \text{ (1770 W/m}_i^2\text{K)}$
Rohrmitte:	$\alpha_{\text{Spalt}} = 1240 \text{ W/m}^2\text{K} \text{ (1500 W/m}_i^2\text{K)}$

Abbildung 16 zeigt die α_{Spalt} -Werte für die übrigen Meßpunkte. Diese liegen sämtlich unter den o.a. Mittelwerten. Für Meßpunkt 483, bei dem geringere Wandtemperaturen vorlagen als bei allen anderen Meßpunkten, wurden die kleinsten Wärmeübergangszahlen ermittelt. Dies ist verständlich, da sowohl die Wärmestrahlung als auch die Wärmeleitfähigkeit des Heliums mit sinkender Temperatur abnimmt.

6. Berechnung der Wärmeübergangszahlen des DUPLEX-Rohrspaltes mit den gemessenen Spaltweiten

6.1 Nach dem Versuch gemessene Spaltweiten

Nach dem Test in der EVA I wurde das DUPLEX-Rohr zu GE zurücktransportiert. Dort wurde es zersägt, so daß die Spaltweiten an 7 axialen Positionen ge-

messen werden konnten. Die Spaltweitenmessungen erfolgten für 16 Umfangswinkel in Schritten von $22,5^\circ$. Die Spaltweite s konnte mit einer Genauigkeit von $\pm 0,05$ mm bestimmt werden. Abbildung 17 zeigt azimutale Spaltweitenprofile an einer oberen, mittleren und unteren Position. Man erkennt, daß die Spaltweiten im oberen und unteren Rohrabschnitt um einen Wert von ca. 0,1 mm variieren, wie zu erwarten war. Dagegen ist in der Rohrmitte eine Ausbeulung von nahezu 2 mm zu verzeichnen bei einem Mittelwert von 0,7 mm (s. auch Foto 7 und 8).

Das detaillierte Spaltweitenprofil über der Rohrlänge ist für 8 Umfangswinkel in Abbildung 18 wiedergegeben. Man erkennt, daß auf einer Länge von ca. 3 m die mittlere Spaltweite \bar{s} größer ist als 0,5 mm.

6.2 Spaltaufweitung im heißen Zustand

Gemessen wurden die Spaltweiten im kalten Zustand. Bei der Berechnung des Wärmeüberganges muß jedoch berücksichtigt werden, daß die thermische Ausdehnung der Außenwand größer ist als die der Innenwand. Für die Vergrößerung eines Rohrdurchmessers D bei einer Temperaturerhöhung von 20°C auf T gilt

$$\Delta D = \alpha \cdot D \cdot (T - 20^\circ\text{C}), \quad (26)$$

$$\alpha = 16 \cdot 10^{-6} / \text{grad}$$

Bei der Außenwand sind sowohl der Rohrdurchmesser als auch die Temperatur größer als bei der Innenwand.

Für die Spaltaufweitung Δs bei typischen Wandtemperaturen mit einem Temperaturabfall von 50°C (wie das Experiment gezeigt hat und wie die folgenden Berechnungen zeigen werden, ist dieser Wert realistisch) ergibt sich (Abb. 19)

	Temperatur	ΔD_a	
Ebene 1 Außenwand.	650°C	1,31 mm	
Innenwand	600°C	0,99 mm	$\Delta s = 0,16$ mm

Ebene 4 Außenwand	900 °C	1,83	
Innenwand	850 °C	1,46 mm	$\Delta s = 0,18 \text{ mm}$

Diese Spaltaufweitung von nahezu 0,2 mm vergrößert den Temperaturabfall im Spalt um nahezu 20 grd (vgl. Abb. 2a).

Abbildung 20 zeigt die mittleren Spaltweiten $\bar{s}(z)$ im kalten und heißen Zustand über der Rohrlänge z . Die Temperaturerhöhung führt zu einer Vergrößerung der über die gesamte Rohrlänge gemittelten Spaltweite von 0,33 mm auf 0,50 mm.

6.3 Berechnung eines nur noch von der Rohrlänge abhängigen mittleren Wärmeleitungsanteils

Der Wärmeleitungsanteil α_{Leit} an der Wärmeübergangszahl des Spaltes ist an einer durch die Rohrlänge z und den Umfangswinkel \varnothing gekennzeichneten Position gegeben durch

$$\alpha_{\text{Leit}}(\varnothing, z) = \frac{\lambda(z)}{s(\varnothing, z)} \quad (27)$$

wobei λ die Wärmeleitfähigkeit des Heliums bezeichnet /6/. Mittelung über den Umfang ergibt

$$\bar{\alpha}_{\text{Leit}} = \lambda \cdot \left(\frac{1}{\bar{s}} \right) \quad (28)$$

Abbildung 20 zeigt den Verlauf der hierfür maßgeblichen Spaltweite $1/(\bar{1}/s)$.

Der für ein Temperaturprofil, wie es bei Meßpunkt 476 vorlag, berechnete Wärmeleitungsanteil $\bar{\alpha}_{\text{Leit}}$ ist Abbildung 21 zu entnehmen. Man erkennt, daß der durch Leitung erfolgende Wärmetransport in der Rohrmitte infolge der Spaltaufbeulung erheblich geringer ist als an den Rohrenden.

6.4 Wärmestrahlungsanteil

Der Wärmestrahlungsanteil α_{Str} an der Wärmeübergangszahl des Spaltes ist unabhängig von der Spaltweite. Wegen

$$D_i \text{ (Außenwand)} \approx D_a \text{ (Innenwand)} \quad (29)$$

vereinfachen sich die entsprechenden Gleichungen (15-17) zu

$$\alpha_{\text{Str}} = S \cdot 4 \cdot T^3 \quad (30)$$

$$S = \frac{\epsilon}{2 - \epsilon} \sigma_s \quad (31)$$

$$\epsilon = 0,613$$

$$\sigma_s = 5,775 \cdot 10^{-8} \text{ W/m}^2\text{K}^4$$

Der für ein Temperaturprofil, wie es bei Meßpunkt 476 vorlag, berechnete Wärmestrahlungsanteil α_{Str} ist in Abbildung 21 über der Rohrlänge aufgetragen. Infolge zunehmender Temperatur steigt α_{Str} von 90 auf 160 W/m²K. Der Anteil am Gesamtwärmetransport in Höhe von ca. 5 bis 20% ist relativ gering.

6.5 Die berechneten Wärmeübergangszahlen des Spaltes

Wärmeleitung und -strahlung tragen additiv zum Gesamtwärmetransport bei:

$$\bar{\alpha}_{\text{Spalt}} = \bar{\alpha}_{\text{Leit}} + \alpha_{\text{Str}} \quad (32)$$

Man entnimmt Abbildung 21, daß die mittlere Wärmeübergangszahl des Spaltes $\bar{\alpha}_{\text{Spalt}}$ zwischen ca. 800 und 1700 W/m²K variiert. Der Mittelwert für das gesamte Rohr beträgt

$$\bar{\alpha}_{\text{Spalt}} \text{ (gesamt)} = 1300 \text{ W/m}^2\text{K}$$

oder bei Bezug auf die Innenoberfläche

$$\bar{\alpha}_{\text{Spalt}} \text{ (gesamt)} = 1580 \text{ W/m}_i^2\text{K}$$

Dieser Wert liegt in der Größenordnung der Wärmeübergangszahlen der übrigen 3 Wärmetransportbarrieren (Helium-Wand, Wandmaterial, Wand-Prozeßgas).

Dieses Ergebnis, das zunächst anhand der Temperaturprofile von Meßpunkt 476 erhalten wurde, gilt auch für alle anderen Meßpunkte außer MP 483, bei dem die Prozeßgastemperatur an Ebene 4 nur 750 °C betrug. Dies zeigt Abb. 22. Die Werte von α_{He} und α_{Str} sind nur geringfügig gegenüber MP 476 verändert.

7. Schlußfolgerungen aus Messung und Berechnung des Wärmetransportes im DUPLEX-Rohrspalt

7.1 Vergleich von berechneten und gemessenen Wärmeüber- gangszahlen des DUPLEX-Rohrspaltes

Entsprechend dem wichtigsten Ziel des Testes des DUPLEX-Rohres in EVA I für das DUPLEX-Rohr-Entwicklungsprogramm (vgl. Abb. 3) - nämlich fundierte Kenntnisse über den Zusammenhang von Spaltgeometrie und Wärmetransportverhalten zu gewinnen - kann nun ein Vergleich zwischen den in Abschnitt 5 aus den Experimentdaten ermittelten Wärmeübergangszahlen mit den in Abschnitt 6 berechneten mittleren Wärmeübergangszahlen angestellt werden. In Abbildung 15, welche die experimentell ermittelten Wärmeübergangszahlen

α_{Spalt} im mittleren und unteren Rohrabschnitt zeigt, ist der Gesamtmittelwert der berechneten mittleren Wärmeübergangszahlen als horizontale Linie eingetragen. Obwohl für das erste Rohrdrittel keine gesicherten Meßwerte vorliegen, kann festgestellt werden, daß EVA I-Versuchsauswertung und Rechnung im Rahmen der Vergleichsmöglichkeit eine befriedigende Übereinstimmung aufweisen.

Somit wurde ein wichtiges Ziel des DUPLEX-Rohr-Entwicklungsprogramms erreicht. Der Test in EVA I lieferte experimentell abgesicherte Kenntnisse über

- die Spaltgeometrie,
- die Spaltaufweitung im Betriebszustand,
- die Wärmetransportmechanismen im Spalt,
- den Wärmetransport in der DUPLEX-Rohrwand.

7.2 Ursachen des stark erhöhten Wärmetransportwiderstandes

Der im Vergleich zu einwandigen Spaltrohren erheblich größere Temperaturabfall in der Wand des hier untersuchten DUPLEX-Rohres ist im einzelnen auf folgende Umstände zurückzuführen:

- 1: Die Spaltweite im kalten Zustand erreichte Werte bis ca. 2 mm, bedingt durch Ovalitäten der Außenwand. Möglicherweise waren die Rohre vor der Explosionsverformung auch nicht exakt gerade//. Angestrebt war ursprünglich eine Spaltweite von nur ca. 0,1 mm. In den Vortests waren derartig geringe Spaltweiten, allerdings bei kürzeren Rohren, realisiert worden.
2. Die Spaltaufweitung im heißen Zustand betrug ca. 0,17 mm. Dieser sehr hohe Wert kommt im wesentlichen dadurch zustande, daß sich die Durchmesser von Außen- und Innenwand um ca. 2 cm unterscheiden.
3. Die Wandstärke der zusätzlichen (äußeren) Rohrwand betrug ebenfalls ca. 1 cm. Somit war der zusätzliche Temperaturabfall in der Außenwand (ca. 15-20 grd) etwa genau so hoch wie der in der Innenwand. Dies wird jedoch etwa zur Hälfte durch den gleichzeitig verbesserten heliumseitigen Wärmeübergang kompensiert. Führt man nämlich einen Vergleich zwischen dem DUPLEX-Rohr und einem einwandigen Spaltrohr bei gleichen Innendurchmessern durch, so ist die wärmetauschende Fläche auf der Heliumseite beim DUPLEX-Rohr ca. 20% größer. Die dadurch bedingte Verbesserung des Wärmeüberganges Helium - Wand (bei gleicher Helium-Strömungsgeschwindigkeit) hat einen um ca. 10 grd geringeren Temperaturabfall zur Folge.

Es kann ausgeschlossen werden, daß sich die Spaltgeometrie während der Versuchsdauer in der EVA I nennenswert geändert hat. Eine Auswertung des ersten Meßpunktes (MP 448) der ersten Versuchsreihe im Mai 1979 ergab Temperaturabfälle im Spalt von ca. 20 bis 30 grd (Ebene 2 und 3), bezogen auf $\dot{q}_i = 50 \text{ W/m}^2$ in Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Versuchsreihe im Juni 1979.

7.3 Die Einbuße in der Prozeßgastemperatur

Es läßt sich somit feststellen, daß der enorme Vorteil eines DUPLEX-Rohres bei der Lösung des Wasserstoff- und Tritiumproblems im Falle des hier untersuchten DUPLEX-Rohres durch eine außerordentlich hohe Einbuße in der Prozeßgastemperatur erkaufte wird. Der Temperaturabfall Helium-Prozeßgas ist bei einer typischen Wärmestromdichte von $\dot{q}_{\text{He}} = 50 \text{ kW/m}^2$ (innen) um 35 bis 40 grd höher als bei einem einwandigen Vergleichsrohr mit gleichem Innendurchmesser (Tab. 2). Er resultiert aus (s. Abb. 13, 14 und Tab. 1):

- 30 bis 35 grd Temperaturabfall im Spalt (32 grd resultieren aus dem Gesamtmittelwert der berechneten Wärmeübergangszahlen)
- 15 grd Temperaturabfall in der Außenwand
- Kompensation von ca. 10 grd durch die vergrößerte helium-seitige wärmeaustauschende Fläche.

Außerdem ist der Raumbedarf der DUPLEX-Rohr-Anordnung um ca. 20% höher als bei einem einwandigen Vergleichsrohr bei unveränderten Helium- und Prozeßgas-Strömungsgeschwindigkeiten.

7.4 Verbesserungsmöglichkeiten zur Verringerung des Temperaturabfalls

Die hier zu verzeichnende Temperatureinbuße von ca. 40 grd hat eine Verschlechterung des Methanumsatzes von ca. 8% abs. zur Folge (bei typischen Bedingungen läßt sich eine Umsatzsteigerung von 1% abs. durch ca. 5 grd Temperaturerhöhung erreichen /3/). Dies würde den Wirkungsgrad einer Nuklearen Prozeßwärmanlage erheblich herabsetzen. Aus diesem Grunde erscheint es unbedingt notwendig, bei der Weiterentwicklung des DUPLEX-Rohrkonzpts alle in Frage kommenden Verbesserungsmöglichkeiten auszuschöpfen.

Aufgrund der bisherigen Erfahrungen sollten erhebliche Verbesserungen in den folgenden Punkten erreichbar sein:

1. Kleinere maximale Spaltweiten im kalten Zustand durch Verminderung der Ovalitäten der Außenwand. Möglicherweise waren bei dem hier untersuchten DUPLEX-Rohr bereits vor der Explosionsverformung Ovalitäten vorhanden oder die Rohre nicht exakt gerade /7/.

2. Verminderung der Spaltaufweitung im heißen Zustand durch die Verwendung von Rohrwänden mit kleineren Wandstärken.
3. Herabsetzung des Temperaturabfalls in der Außen- und Innenwand ergibt sich ebenfalls aus Punkt 2.

Es ist denkbar, daß bei Ausschöpfung aller technisch realisierbaren Möglichkeiten (geringe Ovalitäten, Gesamtwandstärke ca. 10-15 mm) evtl. nur Spaltweiten von ca. 0,2 mm im heißen Zustand (ca. 0,1 mm im kalten Zustand) erzielt werden können. Die Einbuße in der Prozeßgastemperatur läge dann in der Größenordnung von 20 grd bei nahezu gleichem Raumbedarf der DUPLEX-Rohranordnung (s. Tab. 2).

8. Wasserstoffpermeation durch das Innenrohr

8.1 Meßprinzip

Hinsichtlich der Wasserstoffpermeation kann das innere Rohr als repräsentativ für ein einwandiges Reformerrohr angesehen werden. Die besondere Konstruktion des Duplex-Rohres mit der Möglichkeit der Spaltspülung eröffnete erstmals die Möglichkeit, zur Bestimmung der H_2 -Permeation in der EVA I ein direktes Meßverfahren anzuwenden. Beim Einsatz von einwandigen Reformerrohren in früheren Versuchen konnte die in den primären Heliumkreislauf eingedrungene Wasserstoffmenge aus meßtechnischen und apparativen Gründen nur auf indirekte Weise ermittelt werden /2/.

Abbildung 23 zeigt schematisch das Meßprinzip. Typische Versuchsbedingungen sind in Abbildung 24 dargestellt. Als Spülgas wurde reines Helium verwendet. Die Messung des He-Normvolumenstroms \dot{V}_{He} erfolgte mit einer Gasuhr. Die Anreicherung des Heliums mit permeiertem Wasserstoff beim Durchströmen des Ringspaltes wurde gaschromatographisch registriert. Wie weiter unten noch gezeigt wird, war der H_2 -Molenbruch am Eintritt $x_{H_2}^{ein}$ vernachlässigbar klein, so daß der H_2 -Normvolumenstrom am Austritt den H_2 -Permeationsstrom \dot{P} darstellt.

$$\dot{P} = \dot{V}_{He} \cdot x_{H_2}^{aus} \quad (33)$$

Im Spalt hat der H_2 -Partialdruck $p_{H_2}^{Spalt}$ den höchsten Wert am Spaltaustritt. Für diesen gilt

$$p_{H_2}^{Spalt,aus} = p^{Spalt,aus} \cdot x_{H_2}^{aus} \quad (34)$$

wobei $p^{Spalt,aus}$ der Gesamtdruck am Spaltaustritt ist. Dieser ergibt sich aus den Meßwerten für den Gesamtdruck am Spalteintritt p und den Druckabfall über der Spaltlänge Δp .

Abbildung 25 zeigt detailliert die Meßanordnung zur Spaltspülung mit Helium. Helium wurde einem Flaschenbündel entnommen. Die Durchflüsse konnten mit Flow-Metern kontrolliert werden. Die Reinheit des verwendeten Heliums wurde mit einem Gaschromatographen überprüft.

Der Druck am Ein- und Austritt des Spaltes wurde mit Feinmeßmanometern gemessen. Die Druckdifferenz wurde zur Kontrolle auch mit Transmittern gemessen.

Nach Austritt aus dem Spalt wurde der Gehalt an Fremdgasen (außer H_2O) im Helium wie schon am Spalt-Eintritt mit einem Gaschromatographen gemessen. Der Wasserdampf-Partialdruck wurde mit einem Feuchtefühler registriert.

Eine genaue Messung des Helium-Spülgasstromes erfolgte mit Hilfe einer Gasuhr. Anschließend wurde das Helium über einen Kamin ins Freie geleitet.

Die Zu- und Abführungsleitungen waren aus dem Chrom-Nickel-Stahl 1.4841 gefertigt. Die Länge bis zum Spalt-Eintritt betrug ca. 35 m, vom Spaltaustritt bis zur Gasuhr ca. 20 m. Der Außendurchmesser betrug 6 mm, die Wandstärke 1 mm. Die Anbringung der Rohrleitungen am Duplex-Rohr ist in den Fotos 1-5 gezeigt.

Der Gaschromatograph der Firma L'Air Liquide setzte sich aus folgenden Bauteilen zusammen (s. Foto 6, Tabelle 3 und Abb. 26):

Programmeinschub UPR2

Probenwähler UCV6

Spezialkreislauf mit 2 Trennsäulen U2CS

Einschub mit 2 Säulenöfen U2F
Hochfrequenzentladungsdetektor AL11

Die Peakflächen (s. Abb. 27) wurden mit einem Integrator der Firma Spectra-Physics ermittelt. Da die Eichkurven nicht linear sind, mußten für die Eichmessungen verschiedene Eichgaskonzentrationen verwendet werden.

8.2 Versuchsergebnisse

Die durchgeführten Oberflächenbehandlungen des inneren und äußeren Rohres nach der Herstellung, bei der Explosionsverformung, den verschiedenen Tests und die Maßnahmen für den Transport zur KFA sind in Tabelle 4 angegeben.

Nach Einbau des DUPLEX-Rohres in der EVA I und Bestückung mit Meßleitungen wurde am 13.5.1979 die 1. Versuchsreihe gestartet. Ein kurzzeitiger H₂O-Ausfall am 18.5. führte zu einer Beschädigung der Katalysatorschüttung, so daß nach Ausbau des DUPLEX-Rohres und Auswechseln der Katalysatorschüttung eine 2. Versuchsreihe am 10.6.1979 durchgeführt werden mußte.

Das als Spülgas verwendete Helium hatte einen hohen Reinheitsgrad. Bei Kontrollmessungen zu verschiedenen Zeiten wurde kein H₂ am Spalteintritt nachgewiesen. Somit ist die Zunahme des H₂-Stroms über der Spaltlänge $\dot{V}_{H_2}^{Spalt}$ gleich dem H₂-Strom am Spaltaustritt $\dot{V}_{H_2}^{aus}$:

$$\dot{V}_{H_2}^{Spalt} = \dot{V}_{H_2}^{aus} - \dot{V}_{H_2}^{ein} \quad (35)$$

$$\dot{V}_{H_2}^{ein} = 0 \quad (36)$$

$$\dot{V}_{H_2}^{Spalt} = \dot{V}_{H_2}^{aus} \quad (37)$$

In den Abbildungen 28a-e und 29a-d ist der Zeitverlauf des H₂-Stroms am Spaltaustritt $\dot{V}_{H_2}^{aus}$ während der beiden durchgeführten Versuchsreihen dargestellt. Im oberen Teil der Abbildungen sind für die Meßebene 4 (Ende der Katalysatorschüttung) die Helium- und Prozeßgastemperatur und der H₂-Partialdruck im Prozeßgas angegeben. Die Dauer der charakteristischen Be-

triebsweisen im Spaltrohr (N_2 , Prozeßgas, Störfallbedingungen) ist ebenfalls ersichtlich.

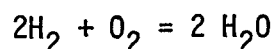
Abbildung 28a zeigt das Verhalten bei Versuchsbeginn. Während des Anfahrens ist N_2 im Spaltrohr. Somit gilt für die Permeationsrate \dot{P} zunächst:

$$\dot{P} = 0,$$

Dennoch wird beim Aufheizen des Spaltrohres ein relativ großer H_2 -Strom am Spaltaustritt beobachtet. Dieser steigt zunächst an und erreicht noch während des Aufheizens ein Maximum von mehr als 1 Nl/h. Als Ursache für diese H_2 -Bildung/-Freisetzung kommen in Betracht

- Ausgasen des Rohrmaterials
- H_2 -Bildung aus Kohlenwasserstoff-Verunreinigungen, die an den Wänden des Spaltes und/oder der Zuleitungen haften.

Um diesen unerwünschten Wasserstoff zu beseitigen, wurden 2 O_2 -Einspeisungen durch Zumischen von O_2 zum Helium-Spülgas durchgeführt. Bereits bei früheren Experimenten am Heliumkreislauf war ein schneller Ablauf der Reaktion



beobachtet worden. Man erkennt, daß der H_2 -Strom - bevor die H_2 -Permeation einsetzt - verschwindet:

$$\dot{V}_{H_2}^{aus} = 0.$$

Aufgrund der O_2 -Behandlung darf angenommen werden, daß zumindest schwach oxidierte spaltseitige Rohrwandoberflächen vorliegen.

Nach Wechsel von N_2 auf Prozeßgas im Rohr erfolgt ein zunächst schwacher Anstieg der Permeationsrate. Bei Erreichen des Betriebszustandes mit einem H_2 -Partialdruck von ca. 13 bar im Rohr am Ende der Reaktionsstrecke ist \dot{P} noch verschwindend klein. Erst innerhalb eines weiteren Tages führt der kontinuierliche Anstieg der Permeationsrate zu einem kurzzeitig konstanten

Maximalwert von 0,9 Nl/h. Die Permeationsstromdichte \dot{P}/A_i , bezogen auf die innere Oberfläche des inneren Rohres im Bereich der Katalysatorschüttung, hat hier einen Wert von

$$\dot{P}/A_i = 0,26 \text{ Nl/m}^2\text{h.}$$

Der Zeitraum von 1 Tag für die Gleichgewichtseinstellung der H-Konzentrationsprofile im Rohrmaterial und damit des H-Permeationsflusses durch die Rohrwand ist vergleichsweise kurz und durch die relativ hohen Wandtemperaturen, die 800 °C überschreiten, bedingt. Bei niedrigeren Temperaturen werden erheblich längere Einstellzeiten beobachtet. Im Falle eines bei ca. 350 °C betriebenen Hydrocrackers /8/ erfolgte der Anstieg der Permeationsrate über einen Zeitraum von ca. 10 Tagen.

Nach Erreichen des Maximums fällt die Permeationsrate kontinuierlich ab, innerhalb von 2 Tagen auf etwa den halben Wert. Die bei der Durchführung des Versuchsprogramms erfolgten leichten Veränderungen in der Wandtemperatur und dem H₂-Partialdruck auf der Angebotsseite führen offensichtlich zu keiner nennenswerten Beeinflussung des Abklingverhaltens. Nur einmal konnte eine kurzzeitige 4-stündige Konstanz von \dot{P} beobachtet werden, und zwar 6 Stunden nach Einstellung der Betriebsparameter für den Meßpunkt 451.

Das hier beobachtete sehr schnelle Abklingen der Permeation ist, wie die Laboruntersuchungen /10/ gezeigt haben, charakteristisch für das Permeationsverhalten unter Prozeßgasbedingungen. Das zum großen Teil aus Wasserdampf bestehende und deshalb stark oxidierend wirkende Reaktionsgemisch erzeugt bei den hohen Temperaturen stabile Oxidschichten mit sehr rasch zunehmender Barrierenwirkung für die Permeation.

Bei einem Störfall infolge H₂O-Ausfall nach 4 1/2 Betriebstagen kam es für die Dauer von 1 1/2 Tagen zu starken Wechselbeanspruchungen hinsichtlich Temperatur und Gaszusammensetzung auf der Prozeßgasseite. Danach wurde eine weitere Permeationshemmung um etwa den Faktor 5 gegenüber dem Maximalwert beobachtet. Die Permeationsrate war nach dieser Betriebszeit bereits über einige Tage nahezu konstant (Maßpunkt 454-457).

Zur Untersuchung des Einflusses der austrittsseitigen Oxidschichten auf den H₂-Durchtritt wurde eine mehrstündige Reduktion mittels H₂-Zumischung zum He-Spülgas vorgenommen. Nach Freispülen der Zuleitungen wurde eine um weni-

ger als 30% erhöhte Permeationsrate beobachtet (nach MP 463). Da man annehmen darf, daß durch die H_2 -Behandlung ein weitgehender Oxidabbau erreicht wurde, ist dieses Ergebnis ein Hinweis darauf, daß die prozeßgasseitigen Oxidschichten allein bereits die starke Permeationshemmung von einigen Zehnerpotenzen im Vergleich zu Rohrwänden mit blanken Oberflächen /10/ bewirken und eine zusätzliche Oxidschicht auf der Austrittsseite nur zu einer weiteren Permeationshemmung um maximal den Faktor 2 führen kann.

Zur Wiederherstellung einer ausgeprägten Oxidschicht auf der spaltseitigen Oberfläche wurde eine 3-stündige O_2 -Behandlung bei einem Partialdruck von ca. 4 bar vorgenommen. Bei der nur kurzen noch zur Verfügung stehenden Versuchszeit wurde überschüssiger Sauerstoff jedoch offensichtlich noch nicht vollständig aus dem Leitungssystem entfernt, so daß ins He-Spülgassystem permeierter Wasserstoff mit diesem zu Wasser reagieren konnte. Dies führte zu einem Anstieg der H_2O -Dampfkonzentration, angezeigt durch eine Taupunkterhöhung. Aus dem beobachteten sehr kleinen H_2 -Strom am Austritt des Spalt-systems kann demzufolge in diesem Versuchsabschnitt nicht auf den Permeationsstrom geschlossen werden.

Nach Abbruch der ersten Versuchsreihe wegen der Katalysatorschädigung beim Störfall wurde das Duplex-Rohr ausgebaut und die Katalysatorschüttung erneuert. Eine 2. Versuchsreihe wurde am 11.6.1979 gestartet. Man erkennt in Abb. 29a, daß die Permeationsrate nach Beginn des Prozeßgasbetriebes nur sehr langsam ansteigt. Nach 1 1/2 Tagen Prozeßgasbetrieb erreicht \dot{P} bzw. \dot{P}/A_i einen Wert von

$$\dot{P} = 0,055 \text{ Nl/h} \quad \text{bzw.} \quad \dot{P}/A_i = 0,016 \text{ Nl/m}^2\text{h},$$

der über 2 Tage bis zur H_2 -Einspeisung nahezu konstant ist (Abb. 29b). Gegenüber dem Maximalwert von $\dot{P}/A_i = 0,26 \text{ Nl/m}^2\text{h}$ in der 1. Versuchsreihe ist die H_2 -Permeationsstromdichte nunmehr um den Faktor 16 gesunken.

Die Wiederholung des H_2 -Einspeiseexperimentes führt auch in dieser Versuchsreihe qualitativ zu dem gleichen Ergebnis. Nach Verschwinden des überschüssigen Wasserstoffs aus dem Spalt-Leitungssystem ist keine nennenswerte Erhöhung der Permeationsrate zu verzeichnen. Bei Versuchsende liegt sogar derselbe Wert vor wie unmittelbar vor der H_2 -Einspeisung (Abb. 29c,d.).

8.3 Vergleich mit Labormessungen

In Abbildung 30 sind die am inneren Rohr gemessenen mittleren Permeationsstromdichten \dot{P}/A_i in Abhängigkeit von der Dauer des Prozeßgasbetriebs aufgetragen. Die EVA I-Meßwerte sind als Kreise dargestellt. Die obere und die untere Kurve entsprechen Laborergebnissen des Instituts für Reaktorentwicklung der KFA Jülich (Prüffeld AUWARM), die an Rohrsegmenten aus Incoloy 800 H bei Temperaturen von 800 bzw. 650 °C gewonnen wurden /10,11/. Diese Labordaten wurden unter Gleichgewichtsbedingungen ermittelt, d.h. die Helium-, Wand- und Prozeßgastemperaturen waren jeweils gleich und die Prozeßgaszusammensetzungen entsprachen den Gleichgewichtszusammensetzungen.

Alle wesentlichen Versuchsparameter der Laborversuche und die in beiden Duplex-Rohr-Versuchsreihen überstrichenen Parameterbereiche sind tabellarisch angegeben. Das $H_2O : CH_4$ -Verhältnis und der Gesamtdruck variierten in der EVA I um die Werte von AUWARM. Die Temperaturen $\vartheta_{Wand,i}$ an der inneren Oberfläche des Innenrohres lagen im oberen Rohrabschnitt in der Nähe von 650 °C und im unteren in der Nähe von 800 °C. Die Werte der am Duplex-Rohr gemessenen mittleren Permeationsstromdichte liegen, wie somit zu erwarten ist, zwischen den Werten für die Rohrsegmente.

In dieser Darstellung erkennt man besonders deutlich, daß die Wasserstoffpermeation innerhalb weniger Tage um mehr als eine Größenordnung geringer wird, verursacht durch den schnellen Aufbau stabiler Oxidschichten unter Prozeßgasbedingungen.

Eine etwas genauere Quantifizierung des Vergleichs zwischen den EVA I- und Laborergebnissen wurde, wie in Abb. 31 dargestellt, auf folgende Weise vorgenommen. Für einen bestimmten Zeitpunkt

(MP 476, nach 11 Tagen Prozeßgasbetrieb, 2. Versuchsreihe)

sind in der Mitte der Abbildung die Profile der Innenwandtemperatur $\vartheta_{Wand,i}$ und des H_2 -Partialdrucks im Prozeßgas $p_{H_2}^{PG}$ aufgetragen.

($\vartheta_{Wand,i} \approx \vartheta_{PG} + 0,5 (\vartheta_{He} - \vartheta_{PG})$ in der 2. Versuchsreihe).

Anhand dieser Darstellung erhält man die axialen Positionen, an denen be-

züglich Innenwandtemperatur und diejenigen, an denen bezüglich H_2 -Partialdruck dieselben Werte vorliegen (linkes Bild). Eine Position, an der im Hinblick auf die Ausbildung der Oxidstruktur während der vorausgegangenen Versuchszeit exakt die gleichen Bedingungen hinsichtlich Temperatur und Gaszusammensetzung wie in AUWARM vorlagen, gibt es nicht. In den Bereichen, innerhalb derer Innenwandtemperatur und H_2 -Partialdruck die AUWARM-Werte erreichen, sind die Bedingungen jedoch ähnlich.

Eine axiale Position in der Mitte dieser Bereiche dürfte den AUWARM-Verhältnissen am nächsten kommen. Der Einfluß einer etwas höheren Wandtemperatur und eines etwas niedrigeren H_2 -Partialdrucks auf die Permeationsrate wird dort zum Teil kompensiert.

Ordnet man nun diesen axialen Positionen die in AUWARM nach 11 Tagen gemessenen H_2 -Permeationsstromdichten zu (8 bzw. $55 \text{ Ncm}^3/\text{m}^2\text{h}$) und interpoliert man linear über der Rohrlänge, so erhält man den im rechten Bild gestrichelt eingezeichneten Verlauf. Integration liefert einen mittleren Wert der H_2 -Permeationsstromdichte von

$$\dot{P}/A_i \text{ (AUWARM-Daten, interpol.)} = 38 \text{ Ncm}^3/\text{m}^2\text{h}.$$

Die in EVA I integral gemessene mittlere H_2 -Permeationsstromdichte von

$$\dot{P}/A_i \text{ (EVA I)} = 16 \text{ Ncm}^3/\text{m}^2\text{h}$$

liegt in derselben Größenordnung. Die beiden Werte unterscheiden sich um einen Faktor

$$\dot{P}/A_i \text{ (AUWARM-Daten, interpol.)} : \dot{P}/A_i \text{ (EVA I)} = 2,4.$$

Dieses Ergebnis ist als eine gute Übereinstimmung zu bewerten, denn es muß berücksichtigt werden, daß einige etwas unterschiedliche Versuchsbedingungen einen exakten Vergleich nicht ermöglichen:

- AUWARM: Vorbehandlung H_2 -Glühung
- EVA: Parameter-Variation während der Versuchsreihen
- EVA: Unterbrechung nach der 1. Versuchsreihe

zöglich Innenwandtemperatur und diejenigen, an denen bezüglich H_2 -Partialdruck dieselben Werte vorliegen (linkes Bild). Eine Position, an der im Hinblick auf die Ausbildung der Oxidstruktur während der vorausgegangenen Versuchszeit exakt die gleichen Bedingungen hinsichtlich Temperatur und Gaszusammensetzung wie in AUWARM vorlagen, gibt es nicht. In den Bereichen, innerhalb derer Innenwandtemperatur und H_2 -Partialdruck die AUWARM-Werte erreichen, sind die Bedingungen jedoch ähnlich.

Eine axiale Position in der Mitte dieser Bereiche dürfte den AUWARM-Verhältnissen am nächsten kommen. Der Einfluß einer etwas höheren Wandtemperatur und eines etwas niedrigeren H_2 -Partialdrucks auf die Permeationsrate wird dort zum Teil kompensiert.

Ordnet man nun diesen axialen Positionen die in AUWARM nach 11 Tagen gemessenen H_2 -Permeationsstromdichten zu (8 bzw. $55 \text{ Ncm}^3/\text{m}^2\text{h}$) und interpoliert man linear über der Rohrlänge, so erhält man den im rechten Bild gestrichelt eingezeichneten Verlauf. Integration liefert einen mittleren Wert der H_2 -Permeationsstromdichte von

$$\dot{P}/A_i \text{ (AUWARM-Daten, interpol.)} = 38 \text{ Ncm}^3/\text{m}^2\text{h.}$$

Die in EVA I integral gemessene mittlere H_2 -Permeationsstromdichte von

$$\dot{P}/A_i \text{ (EVA I)} = 16 \text{ Ncm}^3/\text{m}^2\text{h}$$

liegt in derselben Größenordnung. Die beiden Werte unterscheiden sich um einen Faktor

$$\dot{P}/A_i \text{ (AUWARM-Daten, interpol.)} : \dot{P}/A_i \text{ (EVA I)} = 2,4.$$

Dieses Ergebnis ist als eine gute Übereinstimmung zu bewerten, denn es muß berücksichtigt werden, daß einige etwas unterschiedliche Versuchsbedingungen einen exakten Vergleich nicht ermöglichen:

- AUWARM: Vorbehandlung H_2 -Glühung
- EVA: Parameter-Variation während der Versuchsreihen
- EVA: Unterbrechung nach der 1. Versuchsreihe
- AUWARM: kein radialer Temperaturgradient;

- Prozeßgas hat Gleichgewichtszusammensetzung
- AUWARM: zwischen 650 und 800 °C liegen bisher keine Meßergebnisse vor.

9. Zusammenfassung

Die Auswertung des Versuchs mit dem von der Firma General Electric, USA, gefertigten DUPLEX-Rohr in der Pilotanlage EVA I der Kernforschungsanlage Jülich im Mai und Juni 1979 erbrachte hinsichtlich des Wärmeüberganges in der DUPLEX-Rohrwand im Wesentlichen folgende Ergebnisse, die mit theoretischen Berechnungen verglichen werden konnten.

1. Zur Versuchsauswertung konnten 7 zuverlässige Meßpunkte (Serie 2 im Juni 1979) herangezogen werden.
2. Ausgehend von den gemessenen Temperaturen des Heliums und Prozeßgases und den Wärmestromdichten konnten die Temperaturen der 4 Oberflächen der DUPLEX-Rohrwand mit Hilfe bekannter, an früheren EVA I-Versuchen geprüfter Wärmeübergangsbeziehungen ermittelt werden.
3. Für die Temperaturabfälle im Spalt wurden an den 3 Meßebenen im mittleren und heißen Rohrdrittel Werte zwischen 18 und 52 grd ermittelt, wobei die Wärmestromdichten, bezogen auf die prozeßgas-seitige Innenoberfläche, zwischen 34 und 69 W/m_i^2 lagen. Bei Bezug auf eine Wärmestromdichte von 50 W/m_i^2 ergeben sich Temperaturabfälle zwischen 26 und 39 grd.
4. Aus den Temperaturabfällen im Spalt und den Wärmestromdichten wurden Wärmeübergangszahlen des Spaltes an den 3 Meßebenen im mittleren und heißen Rohrdrittel ermittelt. Der Mittelwert aller Meßpunkte steigt mit der Rohrlänge von

1200 ($\pm 10\%$) auf 1500 ($\pm 20\%$) $\text{W/m}^2\text{K}$.

Für eine Abhängigkeit von der Versuchsdauer gibt es keinen Hinweis.

5. Die nach dem Versuch bei GE gemessenen Spaltweiten variieren über Umfang und Rohrlänge zwischen ca. 0,02 und 2 mm, bedingt durch Ovalitäten der Außenwand. Der Mittelwert über den Umfang hat in der Rohrmitte ein Maximum von 0,7 mm.
6. Bei der Berechnung der Wärmeübergangszahlen des Spaltes wurde berücksichtigt, daß eine Spaltaufweitung infolge unterschiedlicher Ausdehnung von Außen- und Innenwand im heißen Betriebszustand in Höhe von 0,17 mm auftritt.
7. Der Wärmetransport durch den Spalt erfolgt überwiegend mittels Wärmeleitung des Heliums. Der Anteil der Wärmestrahlung beträgt nur 5 bis 20%.
8. Mittelung der berechneten Wärmeübergangszahlen des Spaltes über Umfang und Rohrlänge ergibt

$$\bar{\alpha}_{\text{Spalt(gesamt)}} = 1300 \text{ W/m}^2\text{K}.$$

9. Der Vergleich von Versuchsauswertung und Rechnung zeigt eine befriedigende Übereinstimmung. Somit darf festgestellt werden, daß die Vorstellungen zum Wärmetransport experimentell abgesichert wurden.
10. Der Temperaturabfall Helium-Prozeßgas ist bei einer typischen Wärmestromdichte von 50 kW/m^2 (innen) um 35 bis 40 grd höher als bei einem einwandigen Vergleichsrohr.
11. Dieser Temperaturabfall würde auf ca. 30 grd reduziert, wenn es gelingt, DUPLEX-Rohre mit Spaltweiten von nur 0,1 mm zu fertigen. Bei Verwendung von dünnen Außenwänden könnte der Temperaturabfall auf ca. 20 grd reduziert werden (geringere Spaltaufweitung im heißen Zustand und geringerer Temperaturabfall in der Außenwand).

Hinsichtlich der Wasserstoffpermeation wurden im Wesentlichen folgende Ergebnisse erzielt:

12. Die Spülung des Spaltes zwischen innerem und äußerem Rohr mit Helium ermöglichte die direkte Messung der H_2 -Permeationsrate durch das innere Rohr (Incoloy 800H). Die durch diese integrale Messung ermittelte mittlere H_2 -Permeationsstromdichte betrug nach einem Tag Betrieb mit Prozeßgas $260 \text{ Ncm}^3/\text{m}^2\text{h}$ (bei einer Rohrwandtemperatur von ca. 860°C und einem H_2 -Partialdruck von ca. 13 bar am heißen Rohrende). Im weiteren Versuchsablauf wurde eine Abnahme um den Faktor 16 auf einen Wert von

$16 \text{ Ncm}^3/\text{m}^2\text{h}$ nach insgesamt 10 Tagen Prozeßgasbetrieb

beobachtet (Rohrwandtemperatur ca. 880°C und H_2 -Partialdruck ca. 13 bar am heißen Rohrende). Innerhalb der folgenden 2 Tage war die Permeationsrate praktisch konstant.

13. Zwischen diesen in der EVA I erzielten Ergebnissen und Labordaten besteht im Rahmen der eingeschränkten Vergleichsmöglichkeiten gute Übereinstimmung. Mit den für die Temperaturen 650 und 800°C bei einer Prozeßgas-Betriebsdauer von 11 Tagen vorliegenden Laborwerten wurde eine lineare Interpolation über der Rohrlänge vorgenommen. Die sich daraus ergebende integrale H_2 -Permeationsstromdichte ist um den Faktor 2,4 höher als die am Duplex-Rohr gemessene.
14. Durch abwechselnde mehrstündige H_2 - und O_2 -Zumischung zum Helium-Spülgas wurde die Dicke der spaltseitigen Oxidschichten variiert. Die Zunahme der Permeationsrate nach den Reduzierungen mit H_2 lag unter 30%. Dies steht in Übereinklang mit der Vermutung, daß die Permeation bei vorhandener Oxidschicht auf der Prozeßgasseite und blanker Oberfläche auf der H_2 -Austrittsseite durch das Aufbringen einer ebenso starken Oxidschicht auf dieser Oberfläche allenfalls um die Hälfte reduziert werden kann.
15. Durch Helium-Spülgasströme im Bereich von 500 bis 2000 Nl/h wurde erreicht, daß der H_2 -Partialdruck im Spalt nur einige mbar betrug und somit etwa 1000-fach geringer war als im Prozeßgas. Infolgedessen kann die Permeationsrate durch das äußere Rohr nur einen vernachlässigbar kleinen Bruchteil der Permeationsrate durch das innere Rohr ausmachen.

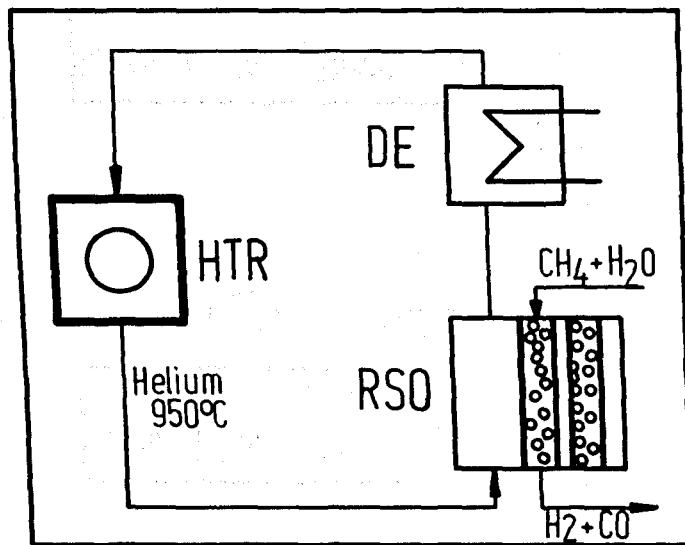
16. Infolge der relativ kurzen EVA I-Betriebszeit konnten die durchgeführten Messungen nur ein erster Ansatz sein zum Studium des Permeationsverhaltens von Wasserstoff (und Tritium) in einem Duplex-Rohr mit Originalabmessungen. Belastbare Aussagen über Permeation z.B. bei Langzeitbetrieb oder bei abgeschaltetem Spülgasstrom können aufgrund dieser Arbeit nicht gemacht werden.

10. Literatur


- /1/ H. Fedders, E. Riensch
EVA I-Ergebnisse zum Wärmeübergang Spaltröhrwand-Katalysator-schüttung
Jül-Spez-112, Mai 1981
- /2/ E. Riensch
Wasserstoff-Permeation durch Rohrreaktorwände bei der Methan-Dampfreformierung
VDI-Berichte Nr. 391 (1980) 322-335
- /3/ H. Neis
Rechnungen und Analysen zur Dampfreformierung von Methan mit Hochtemperaturreaktorwärme
Jül-Spez-48, KFA Jülich, 1979
- /4/ R.A. Greenkorn, D.P. Kessler
Transfer Operations
Mc Graw-Hill Book Company, 1972
- /5/ Gröber, Erk, Grigull
Die Grundgesetze der Wärmeübertragung
Springer-Verlag, Berlin, 1963
- /6/ R. Harth, K. Hammeke
Thermodynamische Stoffwerte von Helium im Bereich von 0 bis 3000 °C und 0,2 bis 200 bar
Jül-666-RB, KFA Jülich, 1970

- /7/ T.K. Odegaard
Duplex Tube Reformer Development Program
Post-Test Assembly and Metallurgical Evaluations
GE-ARSD, March 1980
- /8/ D.J. Truax
Are Hydrogen Permeation Models Accurate?
Hydrocarbon Processing (1978) 149-151
- /9/ P. Görlich
Das Luftspaltrohr
Chem.-Ing.-Techn. 53 (1981) 571 (Synopsis 919/81)
- /10/ H.P. Buchkremer et al.
Überblick über die neueren Arbeiten auf dem Gebiet des
Wasserstoff- und Tritiumverhaltens in Hochtemperaturreaktoren
Jül-1497 (1978), KFA Jülich, IRE
- /11/ M. Hishida
The Results of Test Run 100/2 with the Experimental Facility
"AUWARM"
KFA-IRE-IB-16/1978, Interner Bericht, KFA Jülich
- /12/ H. Fedders, K. Rädle
Das instationäre Verhalten des konvektiv beheizten Festbett-
reaktors. Ein Vergleich von Experiment und Rechnung
Chem.-Ing. Techn. 52 (1980) MS 830/80

Wir danken der gesamten "EVA-Mannschaft" für die gewissenhafte Vorbereitung und Durchführung der Experimente, den Herren R. Menzer und K. Mayer für die Durchführung der Gasanalysen, Herrn A. Bauer für die reibungslose Datenerfassung und Herrn E. Hermsen für seine Mitwirkung bei der Aufbereitung des Datenmaterials.



Problem:
H- und T-Permeation
durch die
Spaltrohrwände

Lösungs-
möglichkeit:
Zwischenschaltung
eines Gassystems
()

HTR Hochtemperaturreaktor
RSO Röhrenspaltfen
DE Dampferzeuger
IHK He-He-Wärmetauscher (intermediate
heat exchanger)

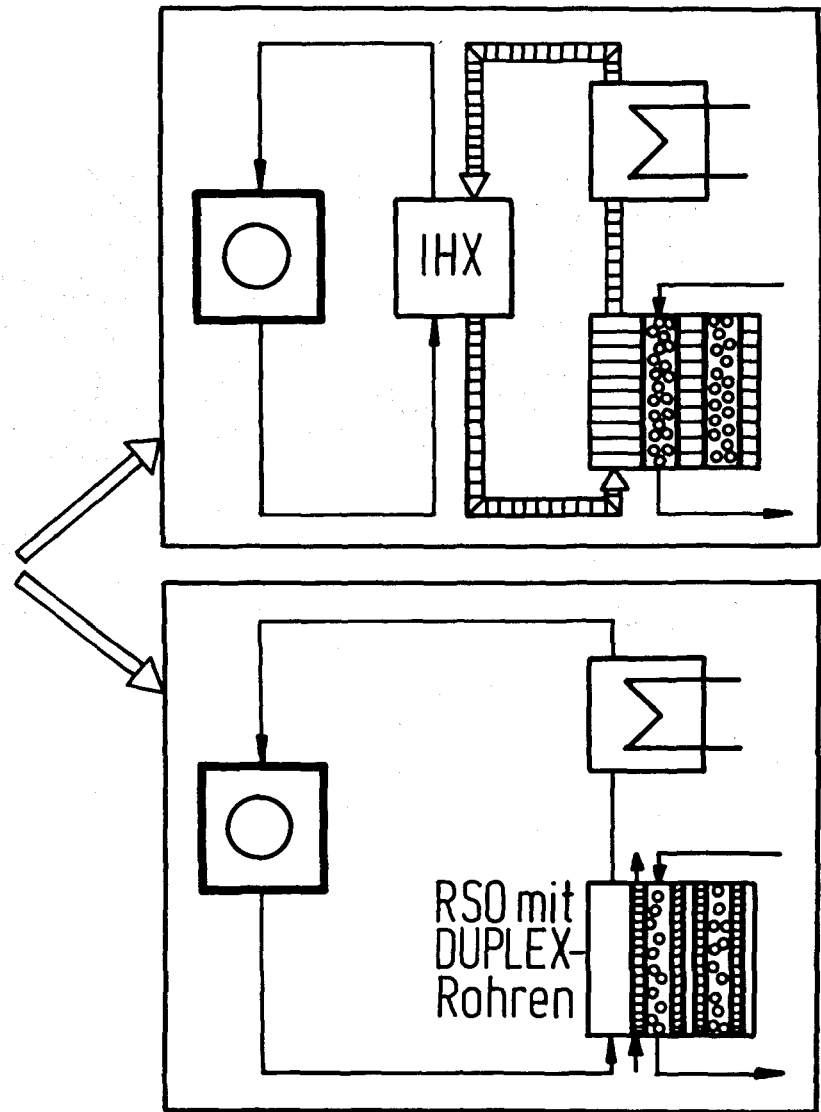


Abb. 1 Konstruktive Varianten der Kopplung eines HTR mit einem RSO

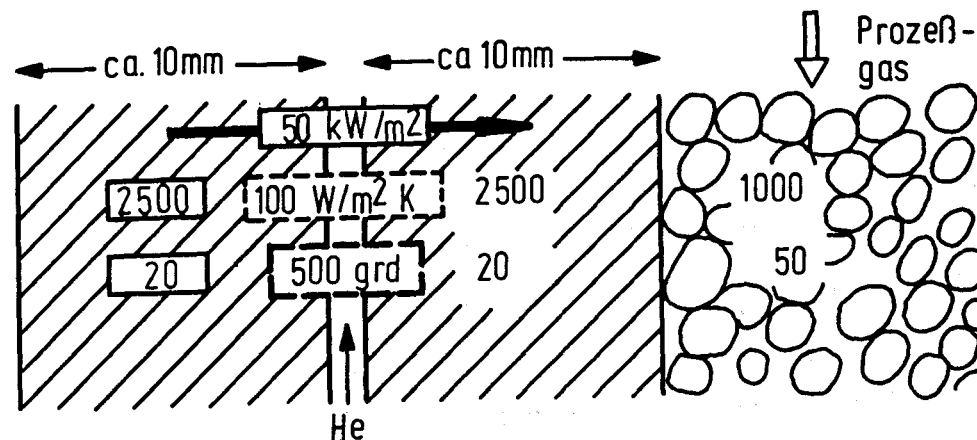
Spalt-		
Weite	Füllung	Wärme - transp.
beliebig	—	Strahlung

$T \approx 800^\circ\text{C}$



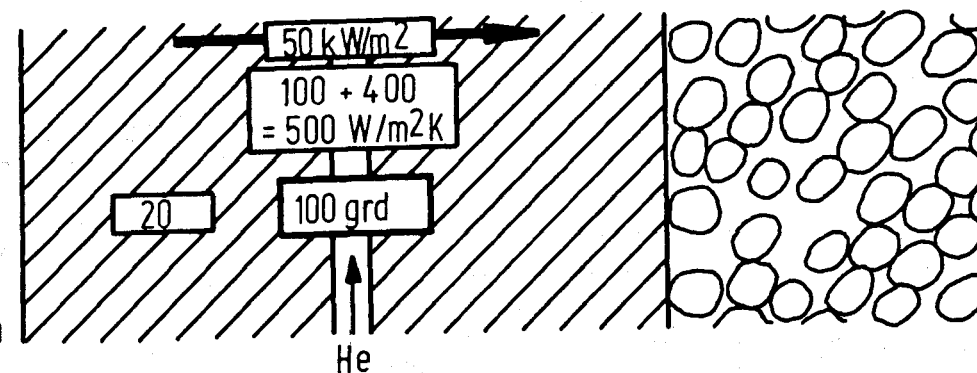
$$\alpha \approx 1000$$

$$\Delta T \approx 50$$



1mm	He	Strahlung +Leitung
-----	----	-----------------------

$\lambda_{\text{He}} \approx 0,4 \frac{\text{W}}{\text{m}^2 \frac{\text{K}}{\text{m}}}$



0,1mm	He	Strahlung +Leitung
-------	----	-----------------------

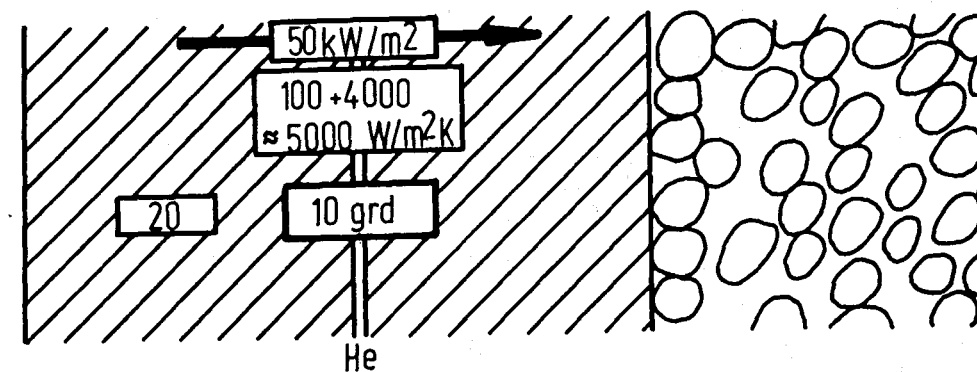


Abb. 2a: Abschätzung des Temperaturabfalls in einem DUPLEX-Rohrspalt

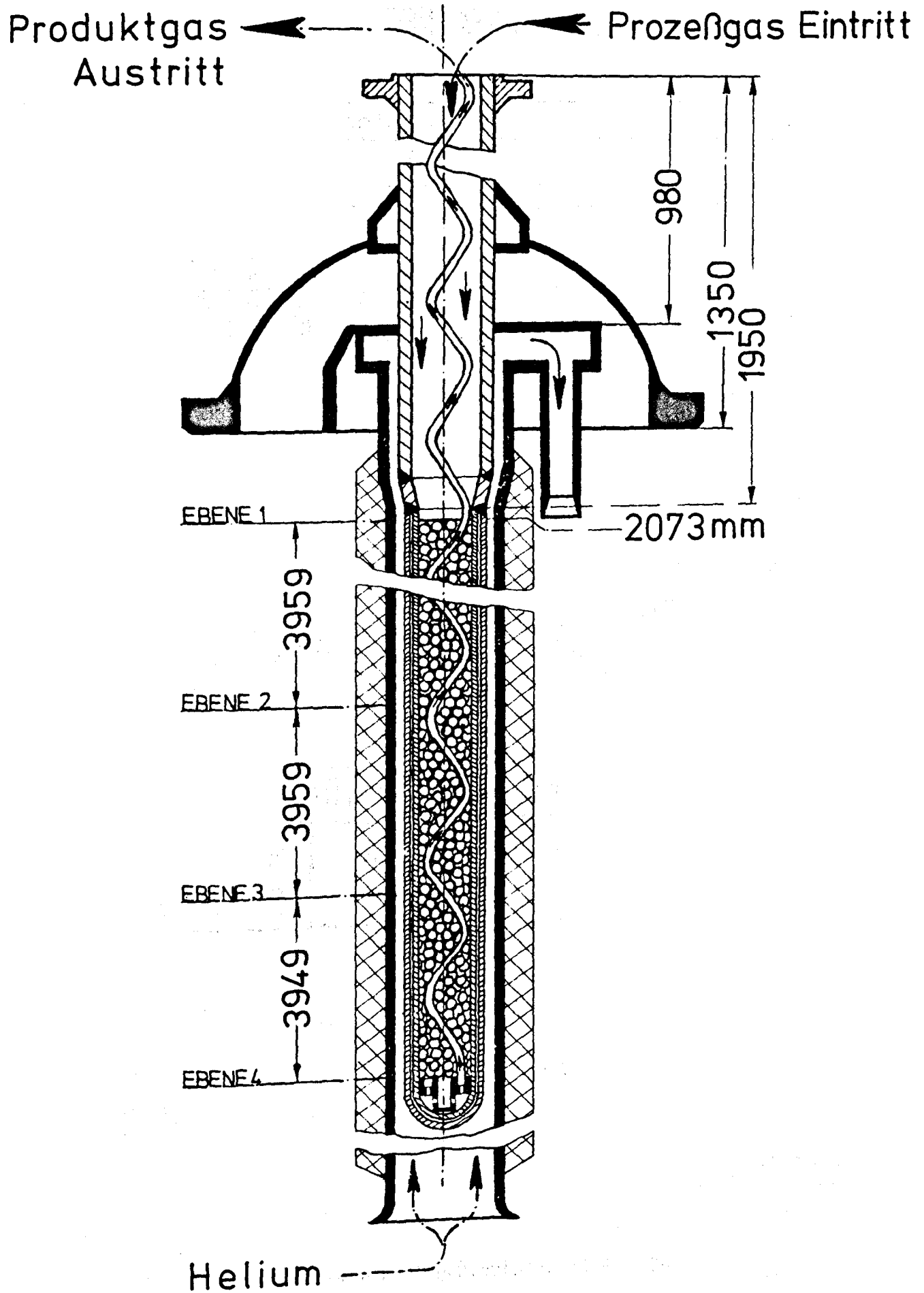


Abb. 2b: DUPLEX-Rohr in der EVA I

Zusammenarbeit GE-ARSD und KFA-NFE

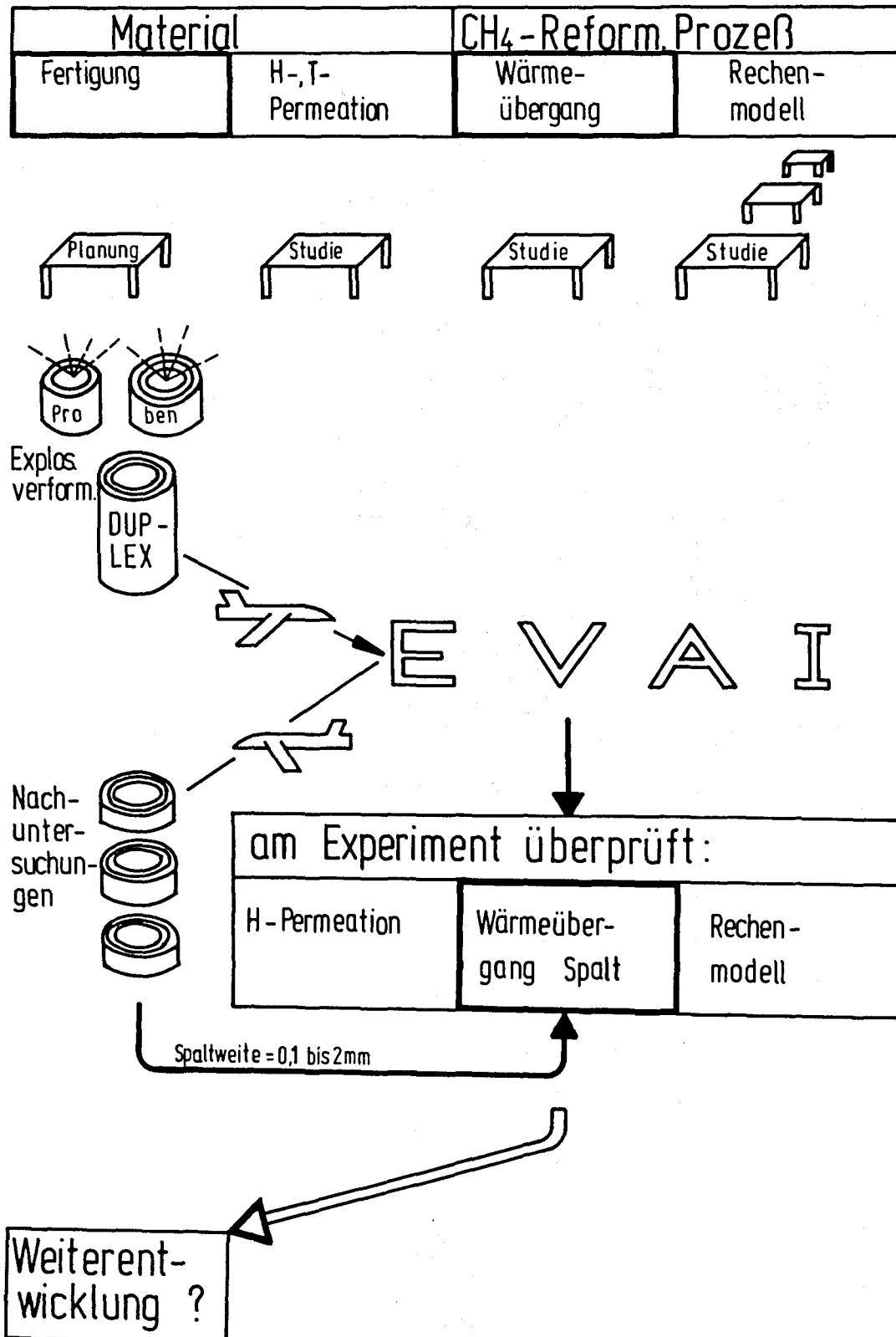


Abb. 3

DUPLEX-Rohr Entwicklungsprogramm

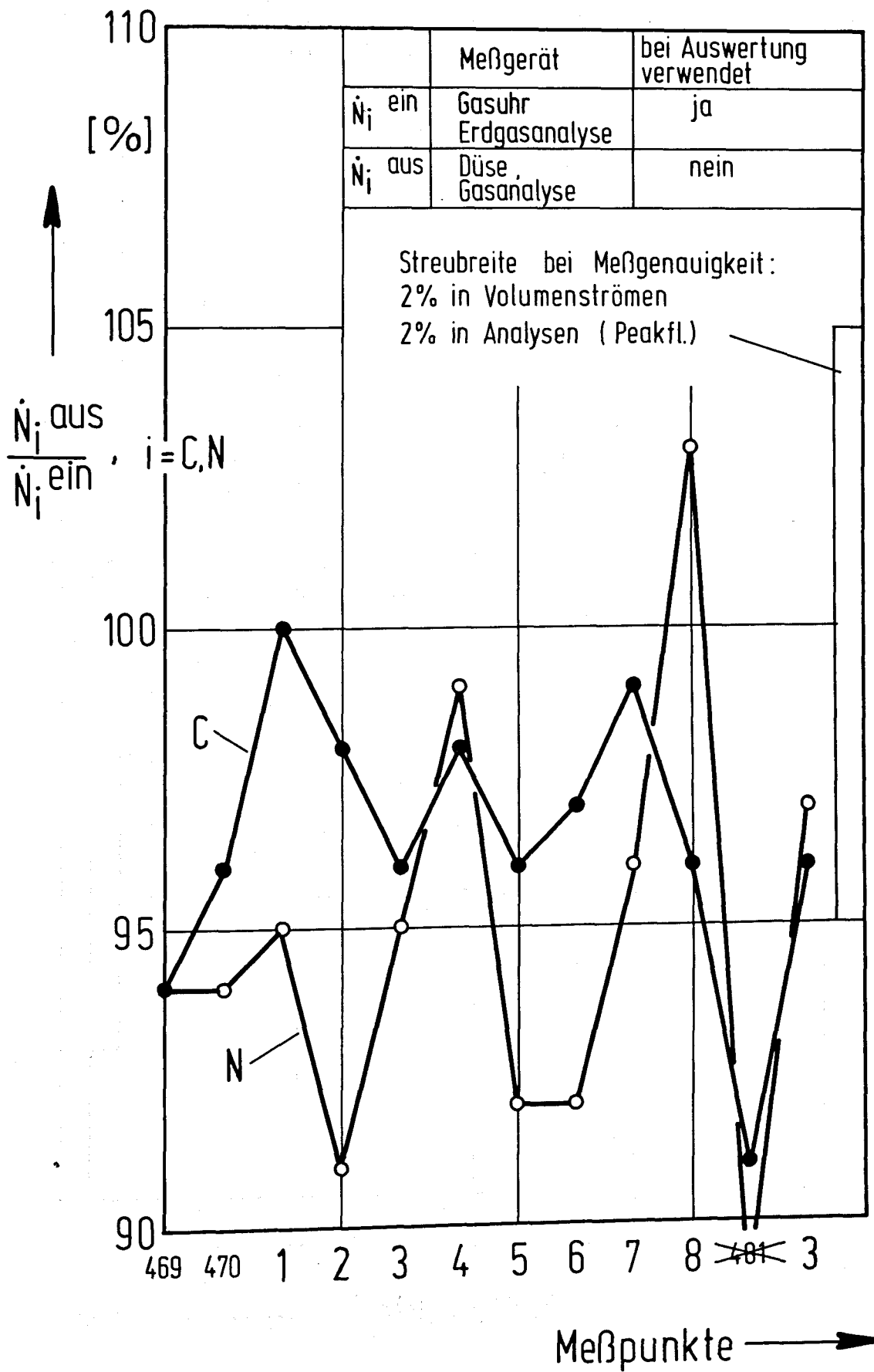


Abb. 4

C- und N-Atombilanz zwischen Eintritt und Austritt

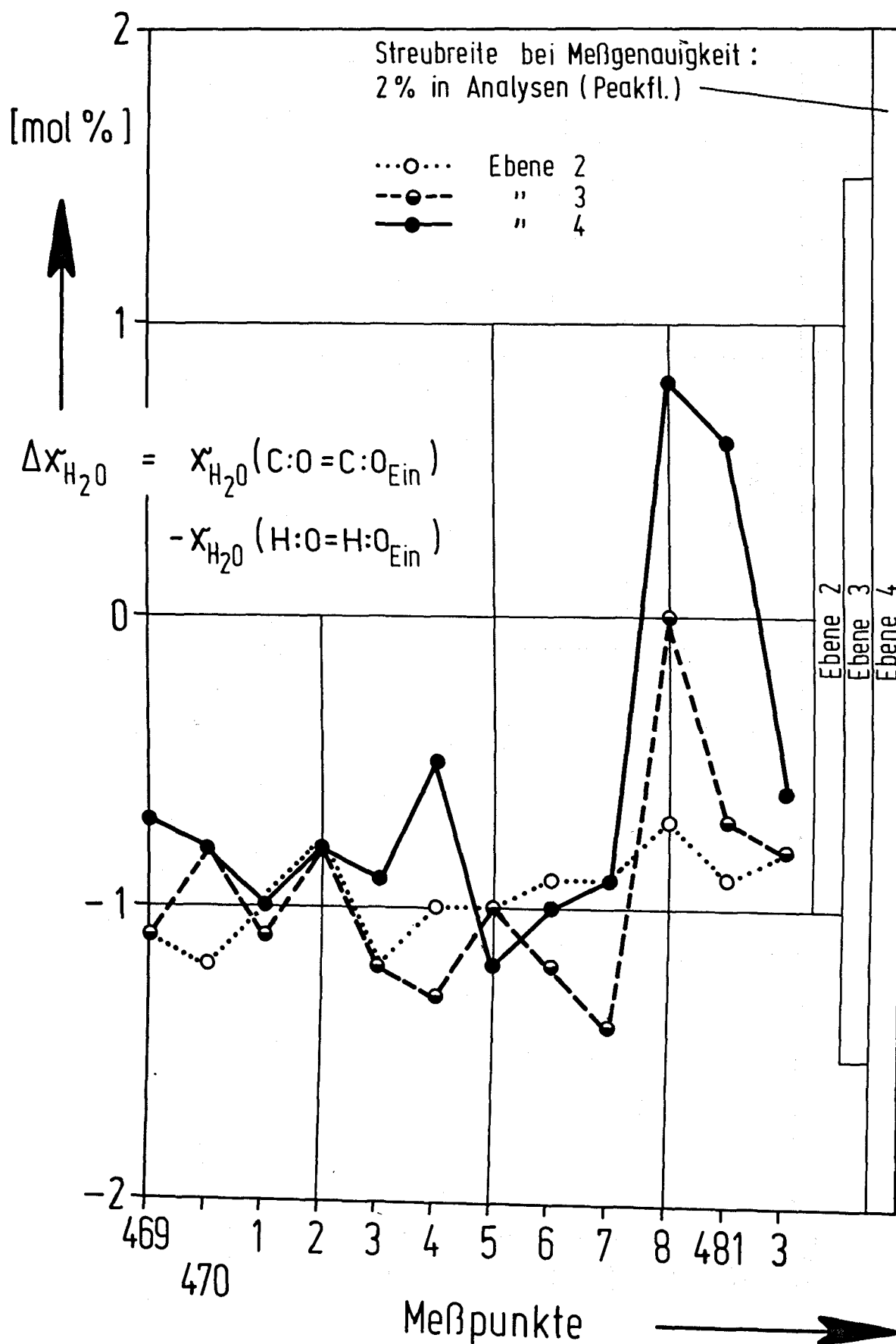


Abb. 5 Unterschied in den berechneten H_2O -Molenbrüchen bei Erfüllung der C : O- bzw. H : O-Bilanz

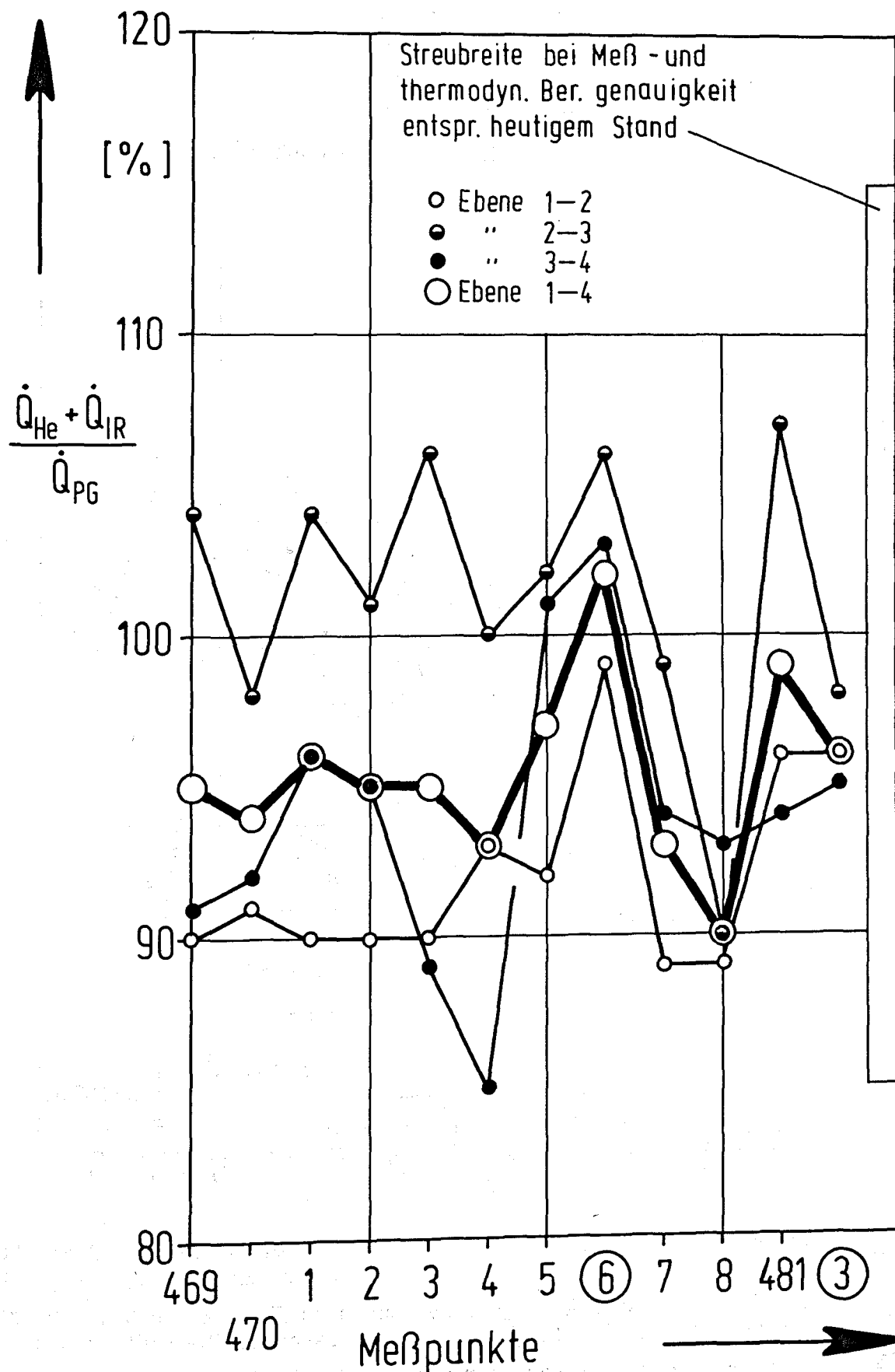


Abb. 6

Wärmebilanz zwischen abgegebener (Helium und innere Rückführung) und aufgenommener Wärme (Prozeßgas)

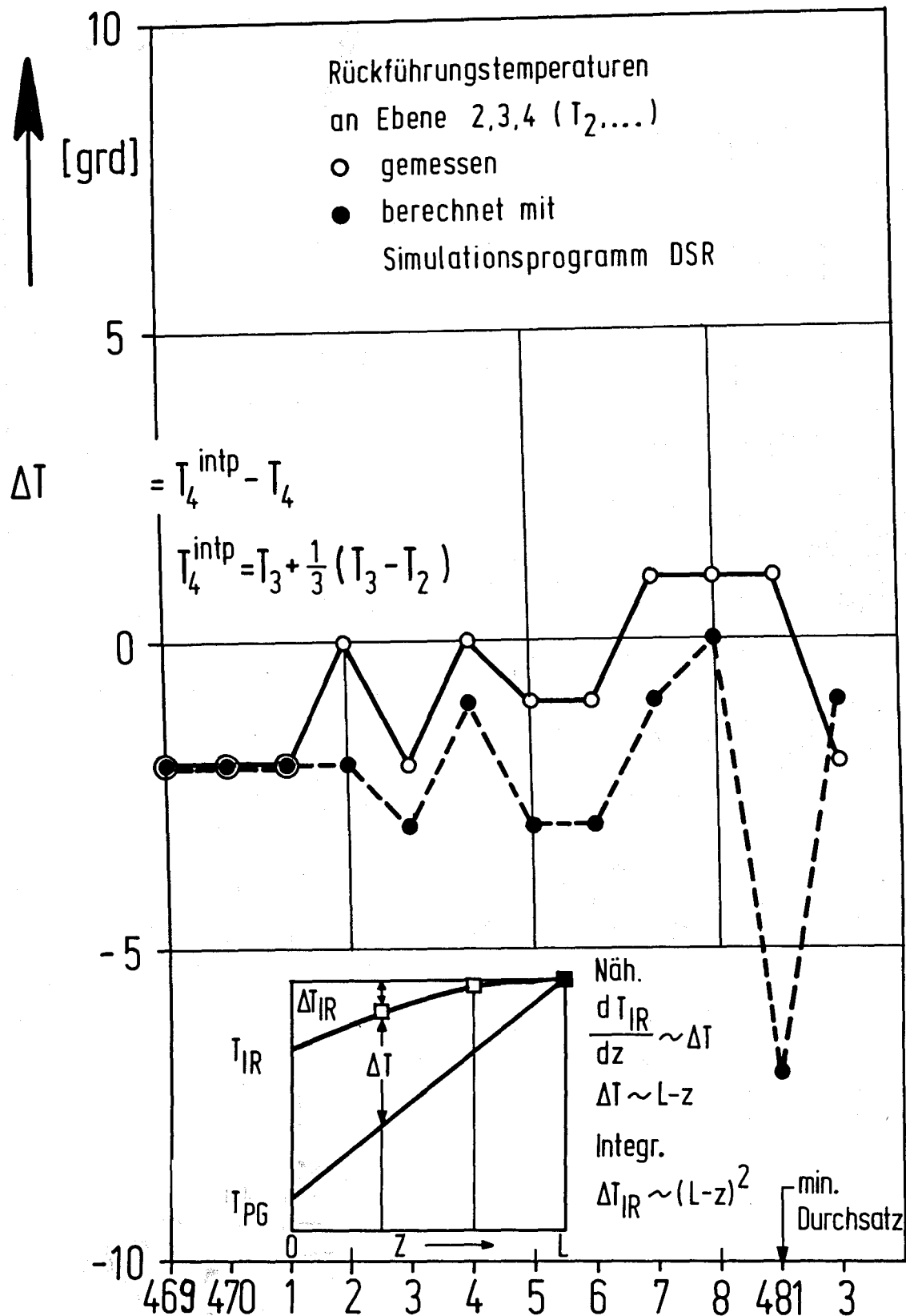


Abb. 7

Kontrolle der Prozeßgastemperatur am Schüttungsausstritt. Abweichung der nach dem einfachen parabolischen Beobachtermodell $\Delta T_{IR}(z) \sim (L - z)^2$ mit Hilfe der Rückführungstemperaturen an Ebene 2 und 3 geschätzten Temperatur $T_{IR}(L) = T_{PG}(L)$ von der gemessenen. Überprüfung des Beobachtermodells anhand der mit dem Simulationsprogramm DSR berechneten Temperaturen.

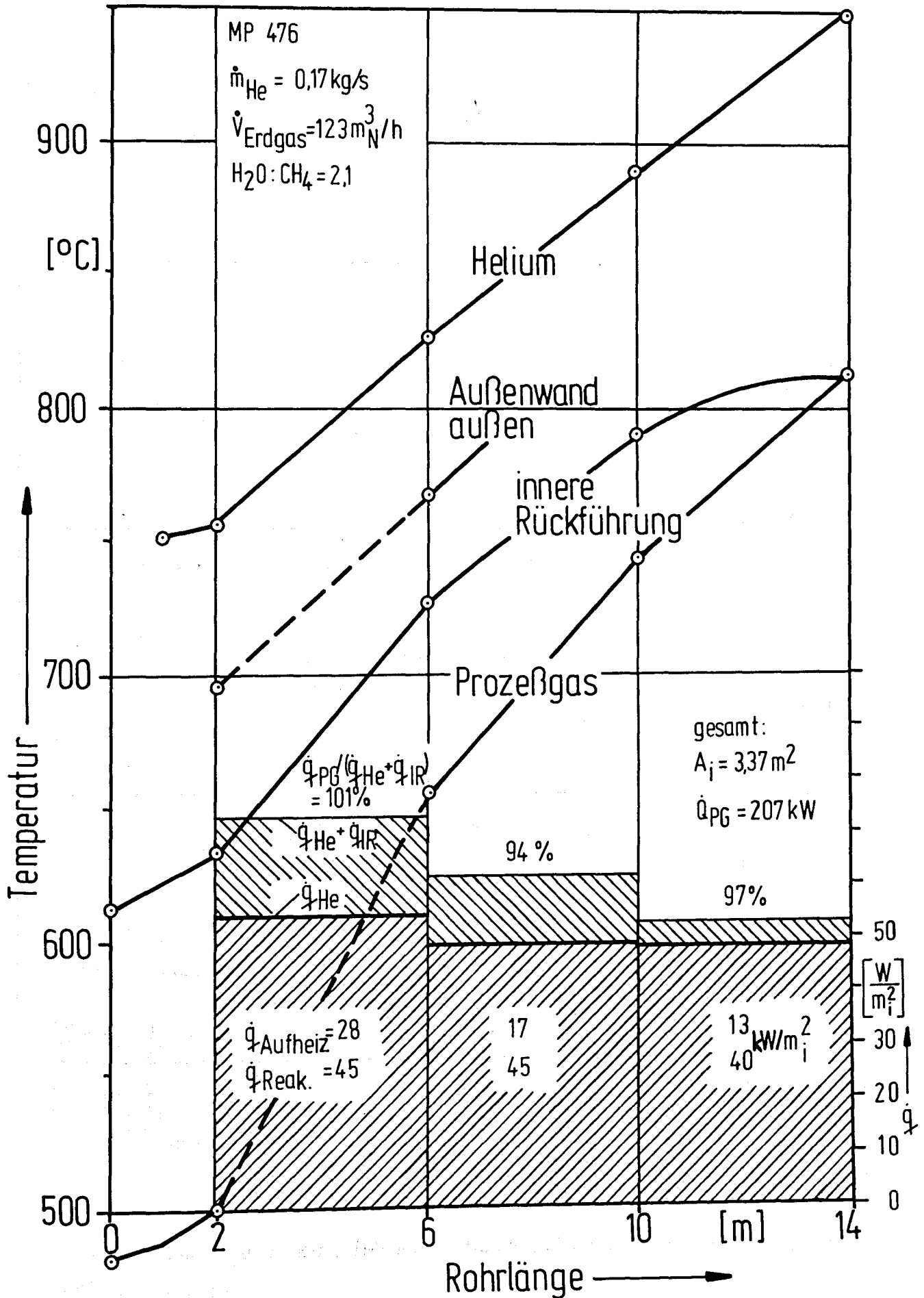


Abb. 8

Gemessene Temperaturen und mittlere Wärmestromdichten, bezogen auf die Innenoberfläche des DUPLEX-Spaltrohres

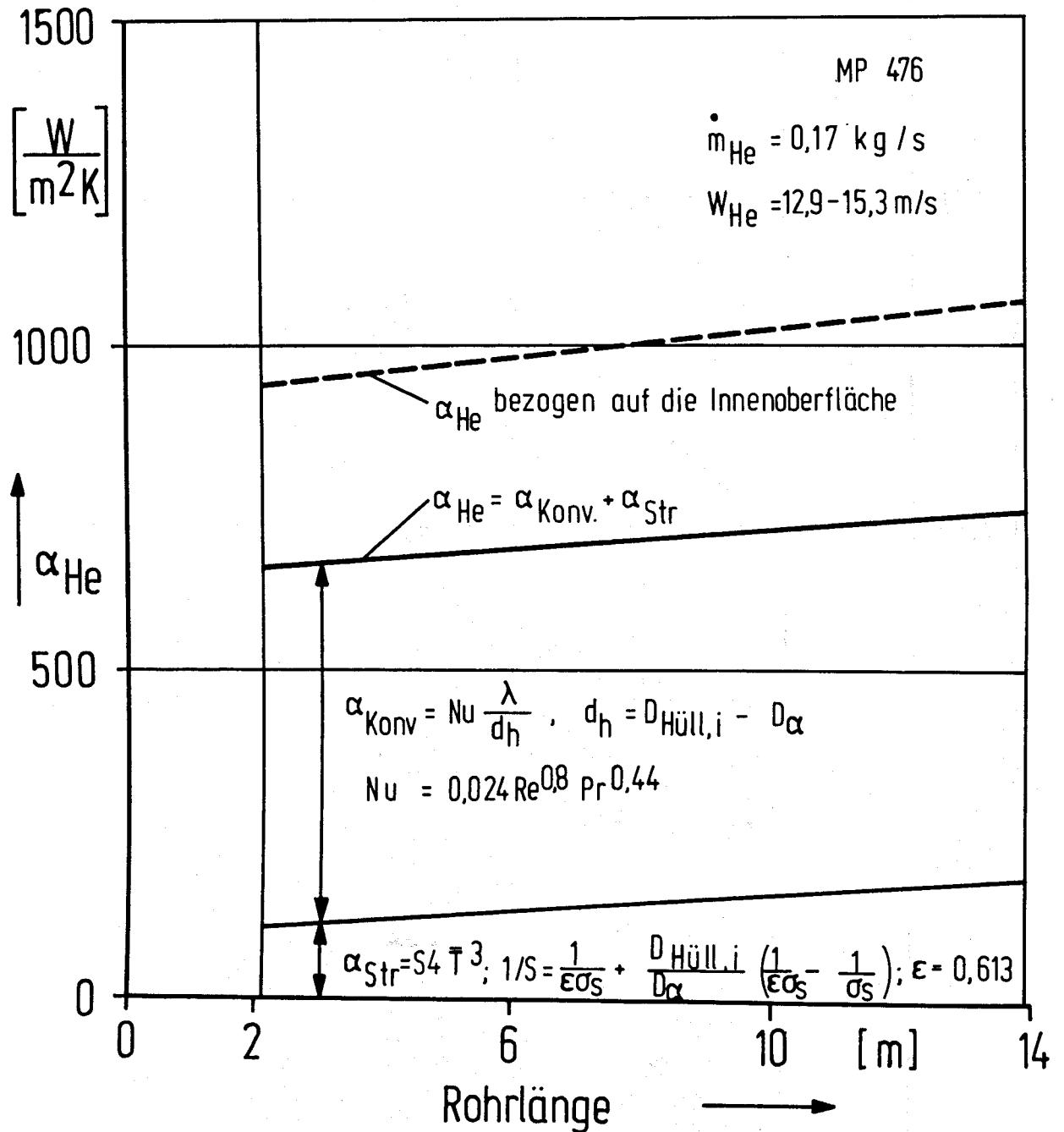


Abb. 9 Berechnete Wärmeübergangszahlen Helium-Wand über der Rohrlänge

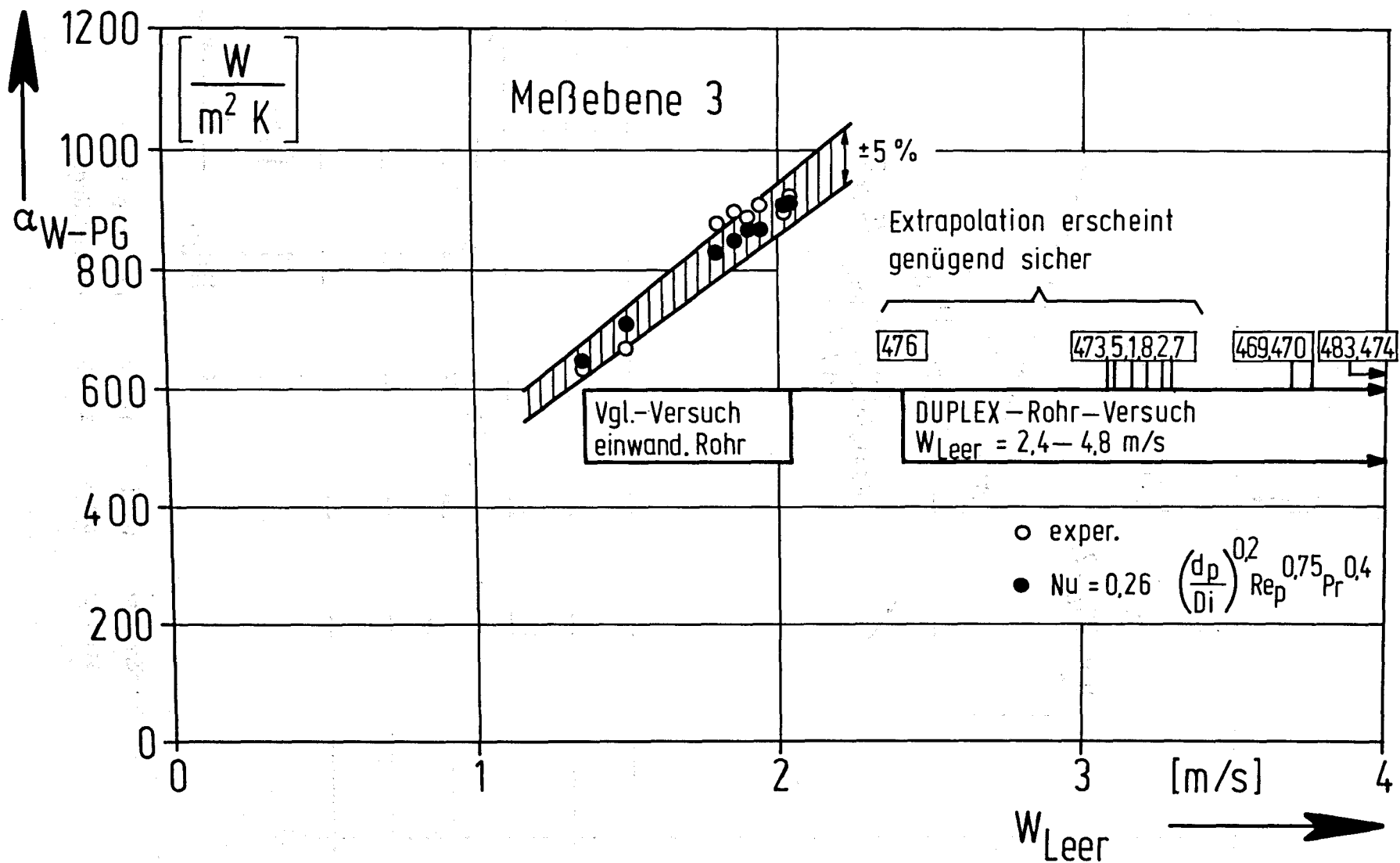


Abb. 10 Wärmeübergangszahlen Wand-Prozeßgas bei unterschiedlichen Strömungsgeschwindigkeiten

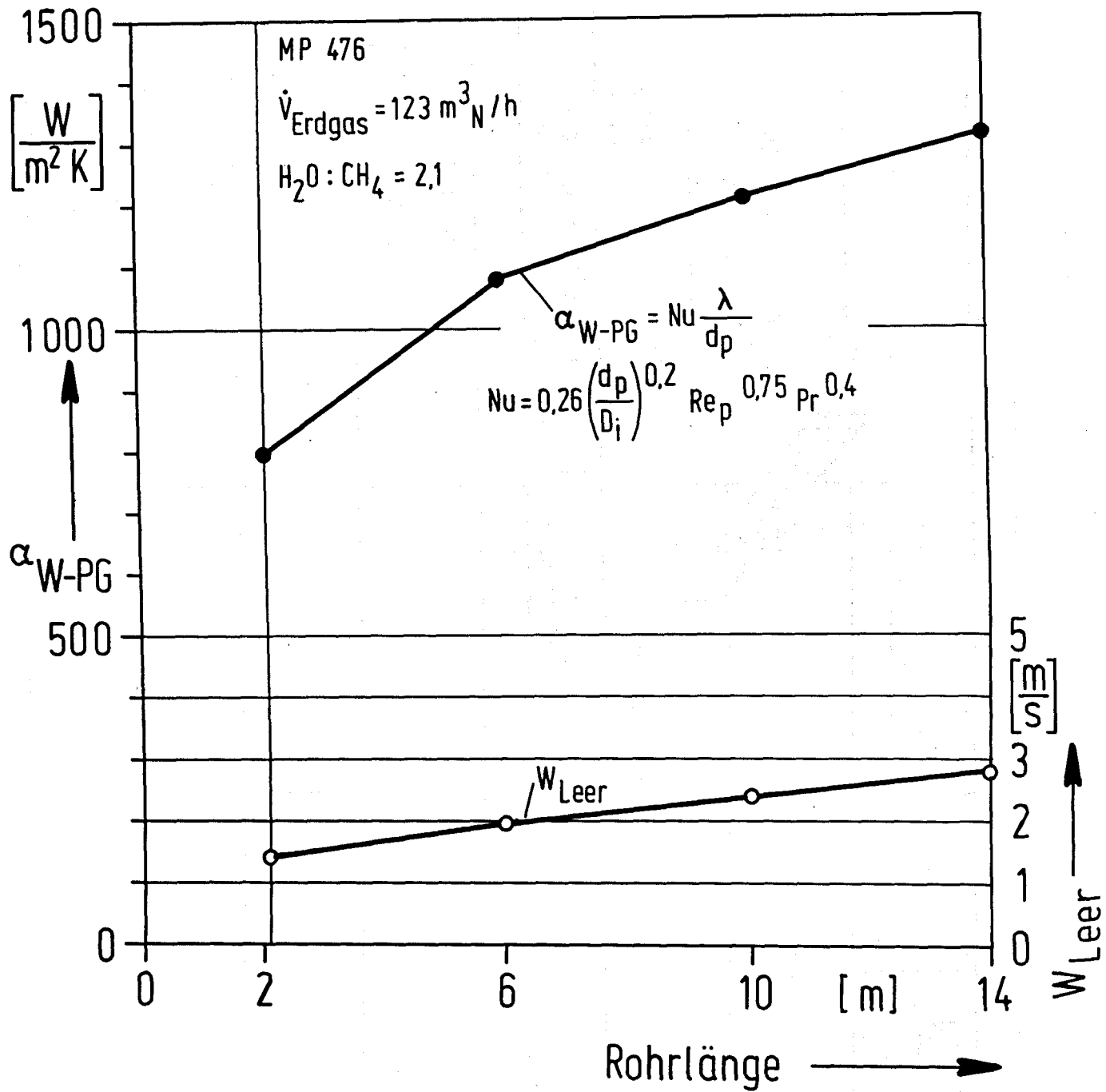


Abb. 11 Gemessene Strömungsgeschwindigkeiten w_{Leer} und berechnete Wärmeübergangszahlen Wand-Prozeßgas über der Rohrlänge

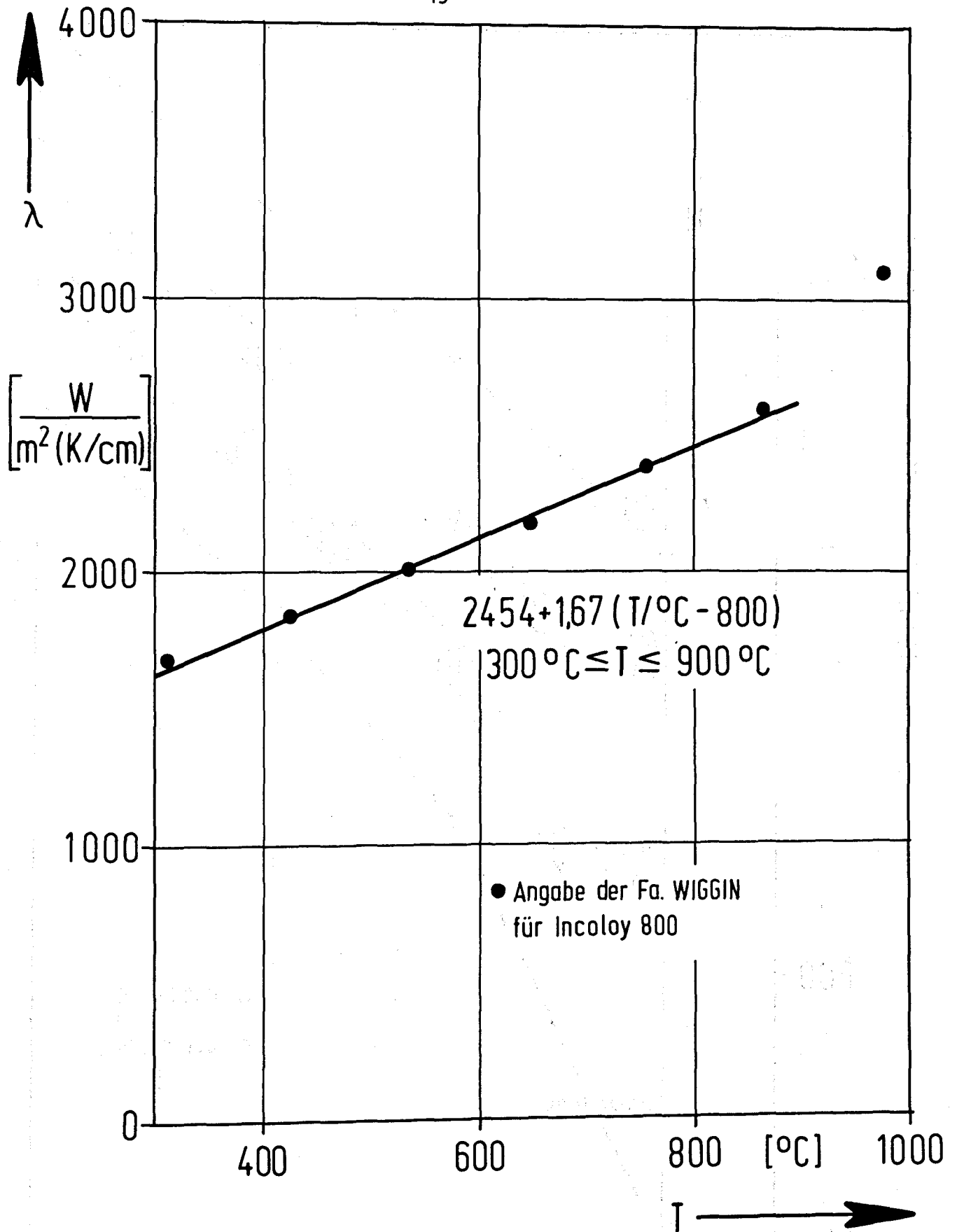


Abb. 12 Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von Incoloy 800H

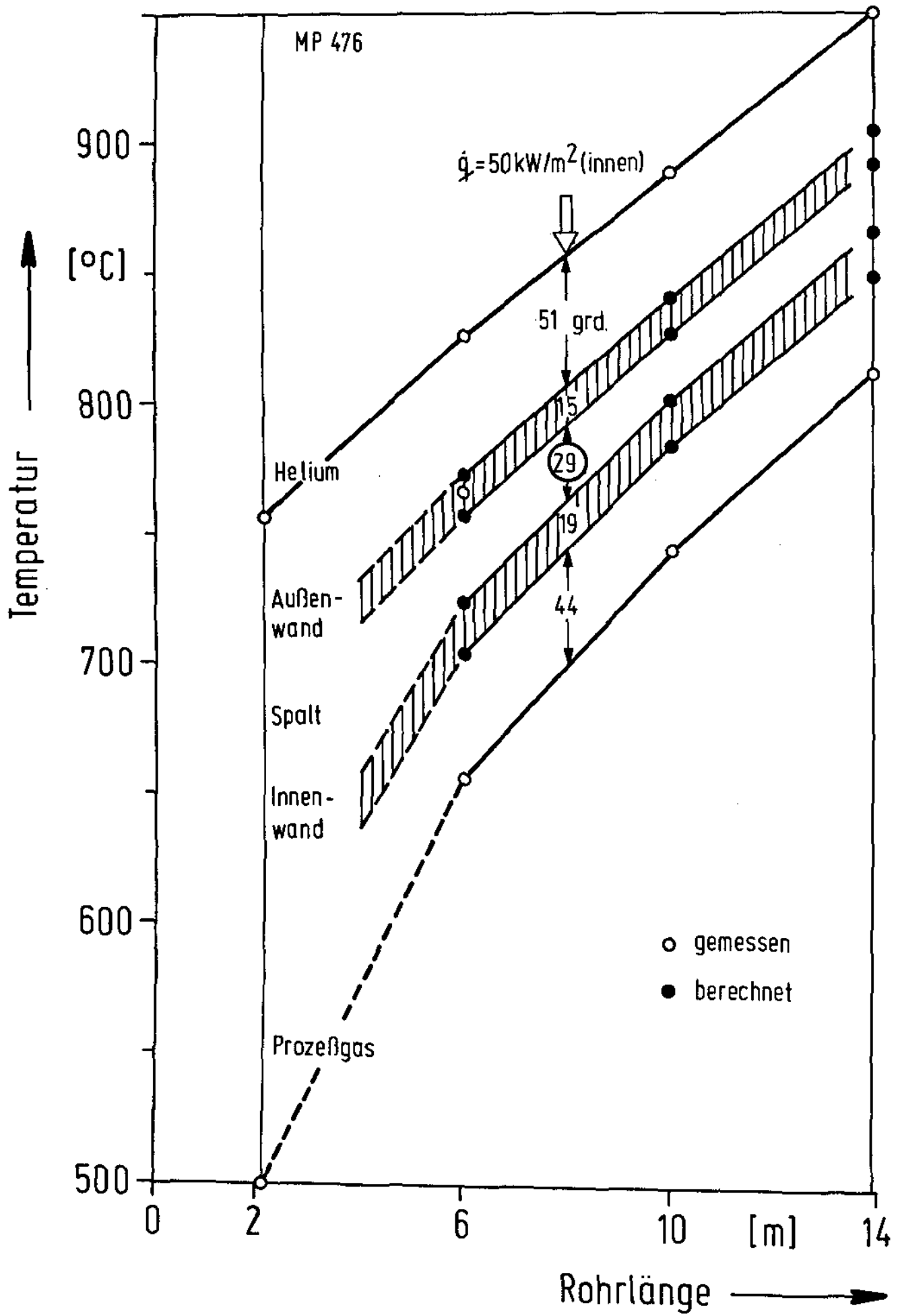


Abb. 13

Gemessene und berechnete Temperaturen

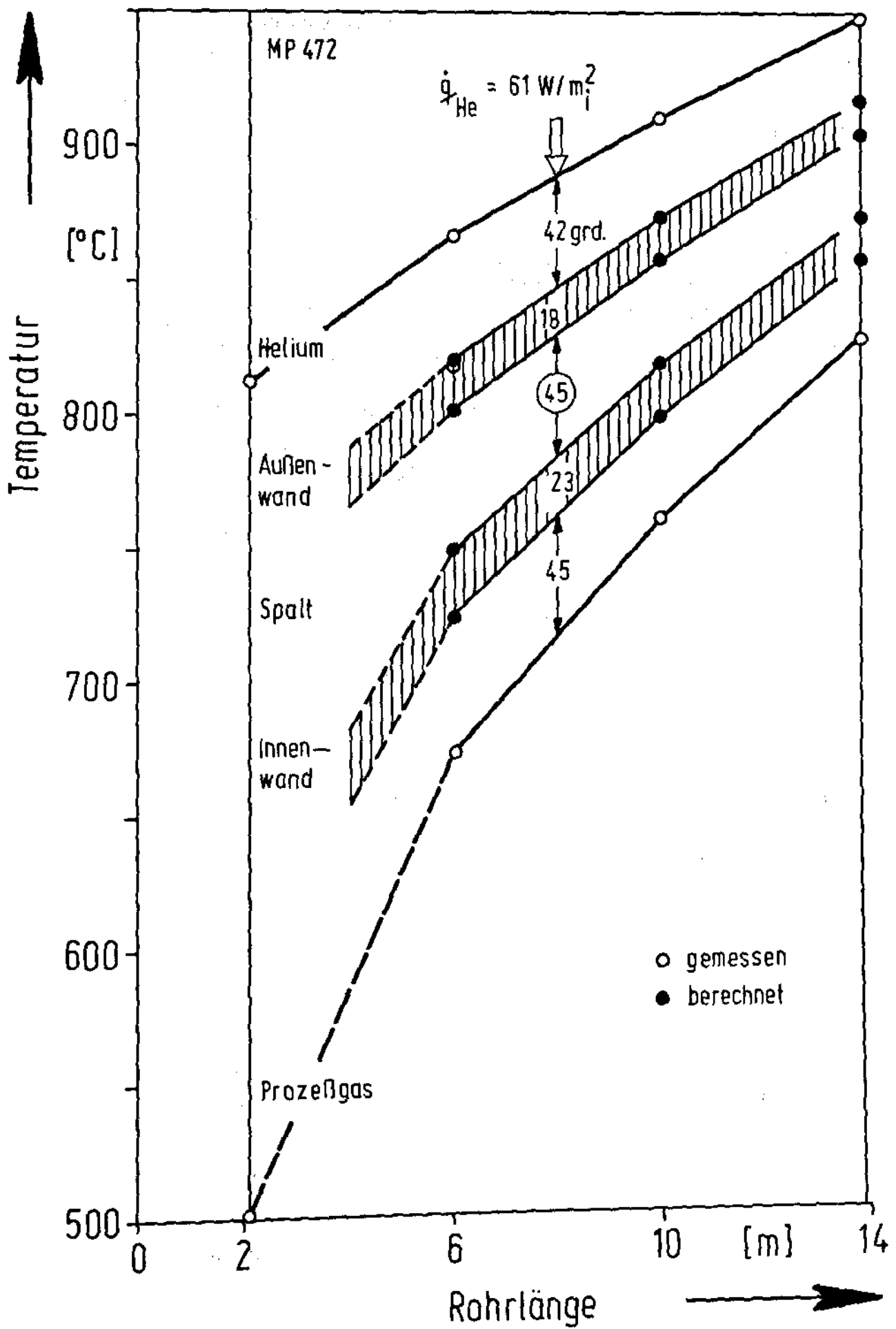


Abb. 14

Gemessene und berechnete Temperaturen

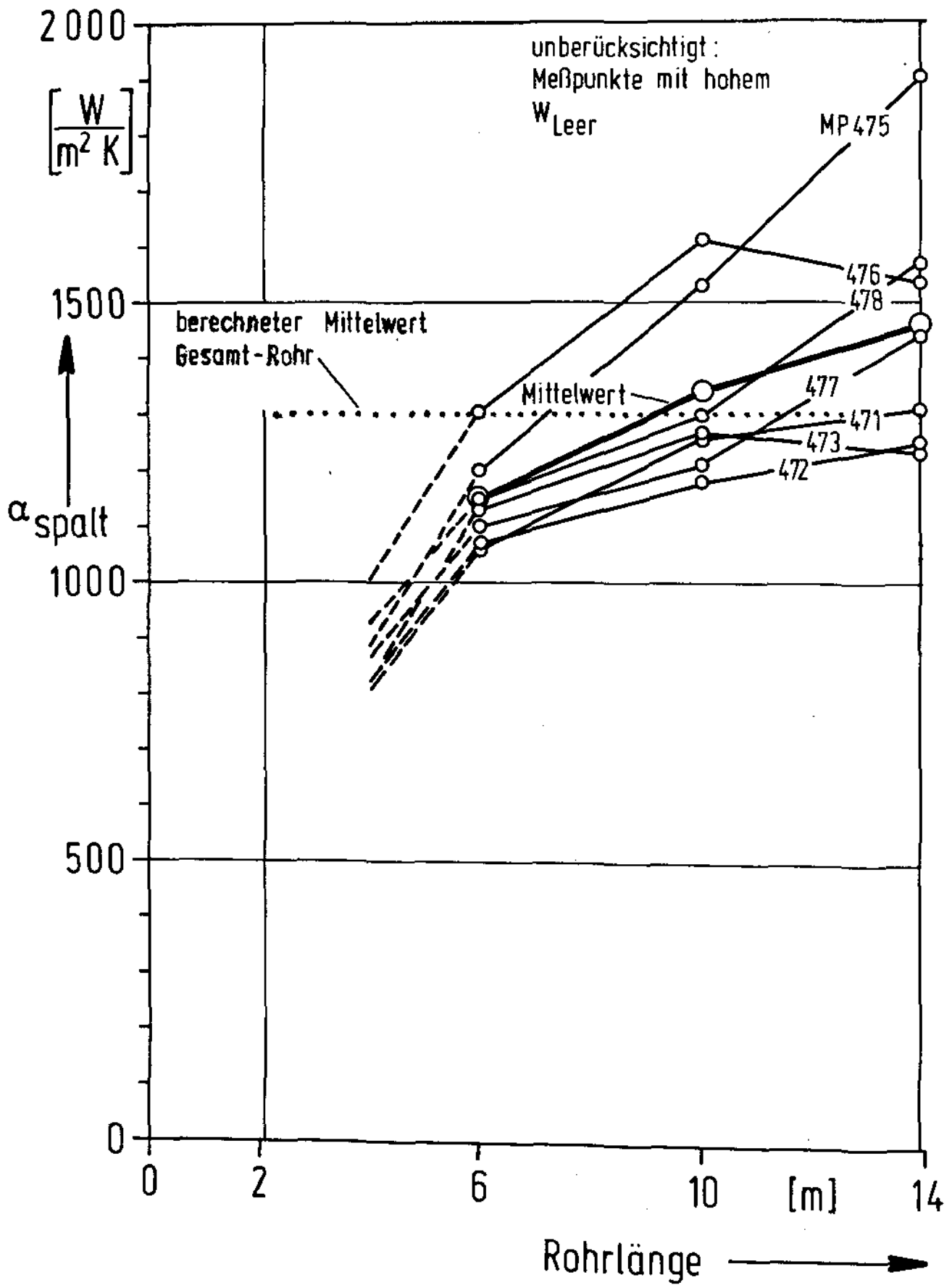


Abb. 15

Experimentell ermittelte Wärmeübergangszahlen des
DUPLEX-Rohrspaltes

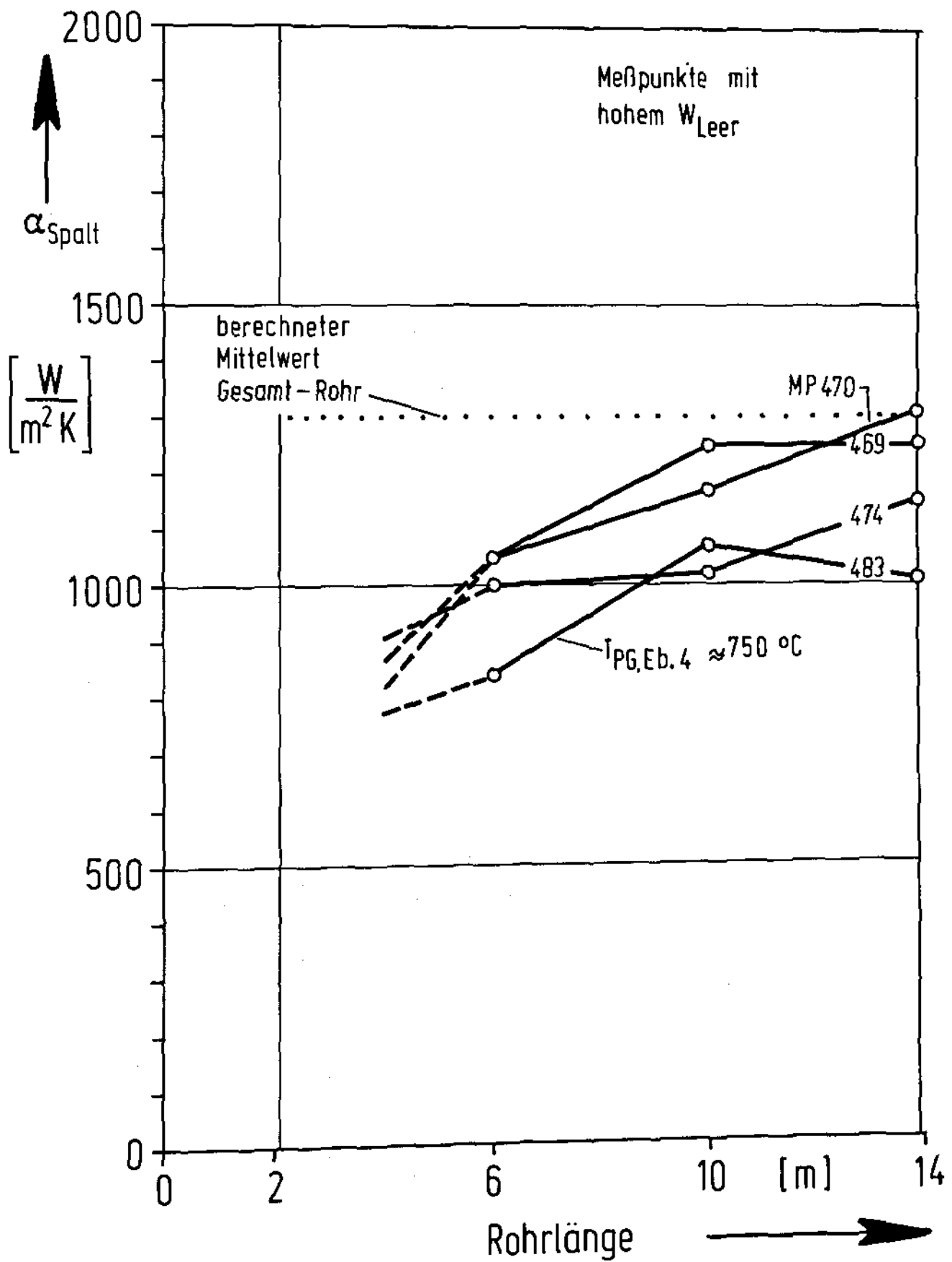


Abb. 16 Experimentell ermittelte Wärmeübergangszahlen des DUPLEX-Rohrspaltes

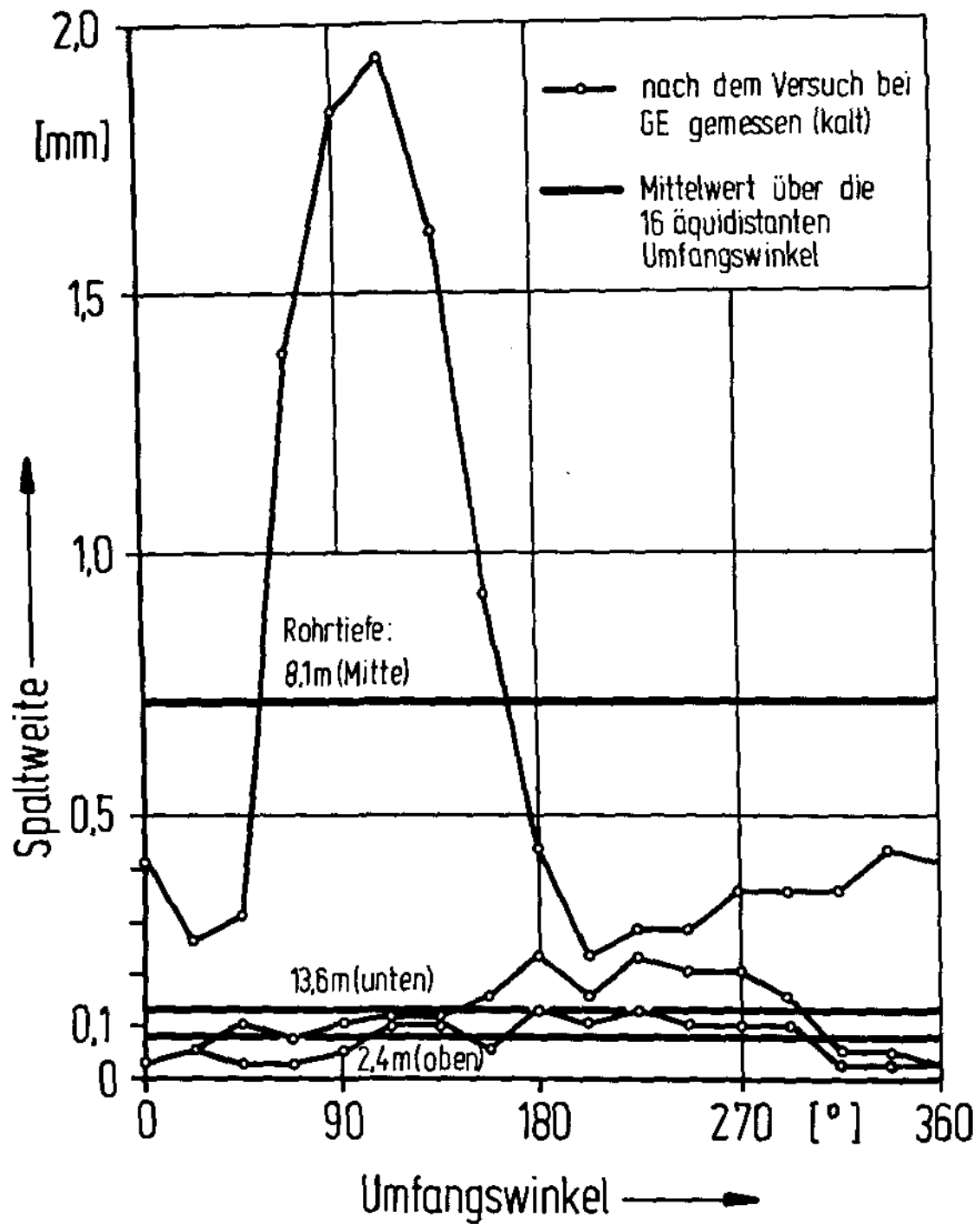


Abb. 17

Gemessene Spaltweiten, aufgetragen über dem Umfangswinkel

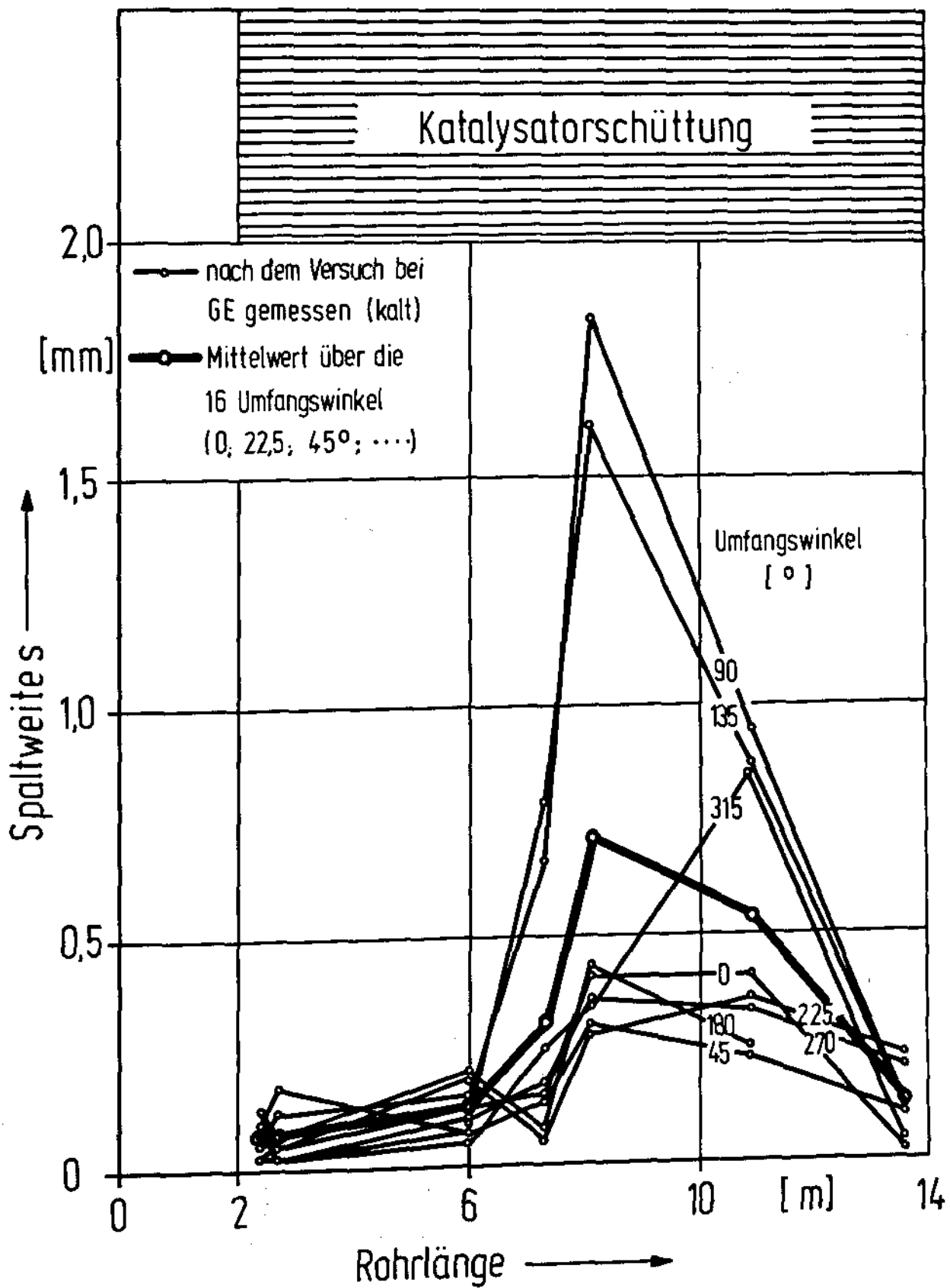


Abb. 18

Gemessene Spaltweiten, aufgetragen über der Rohrlänge

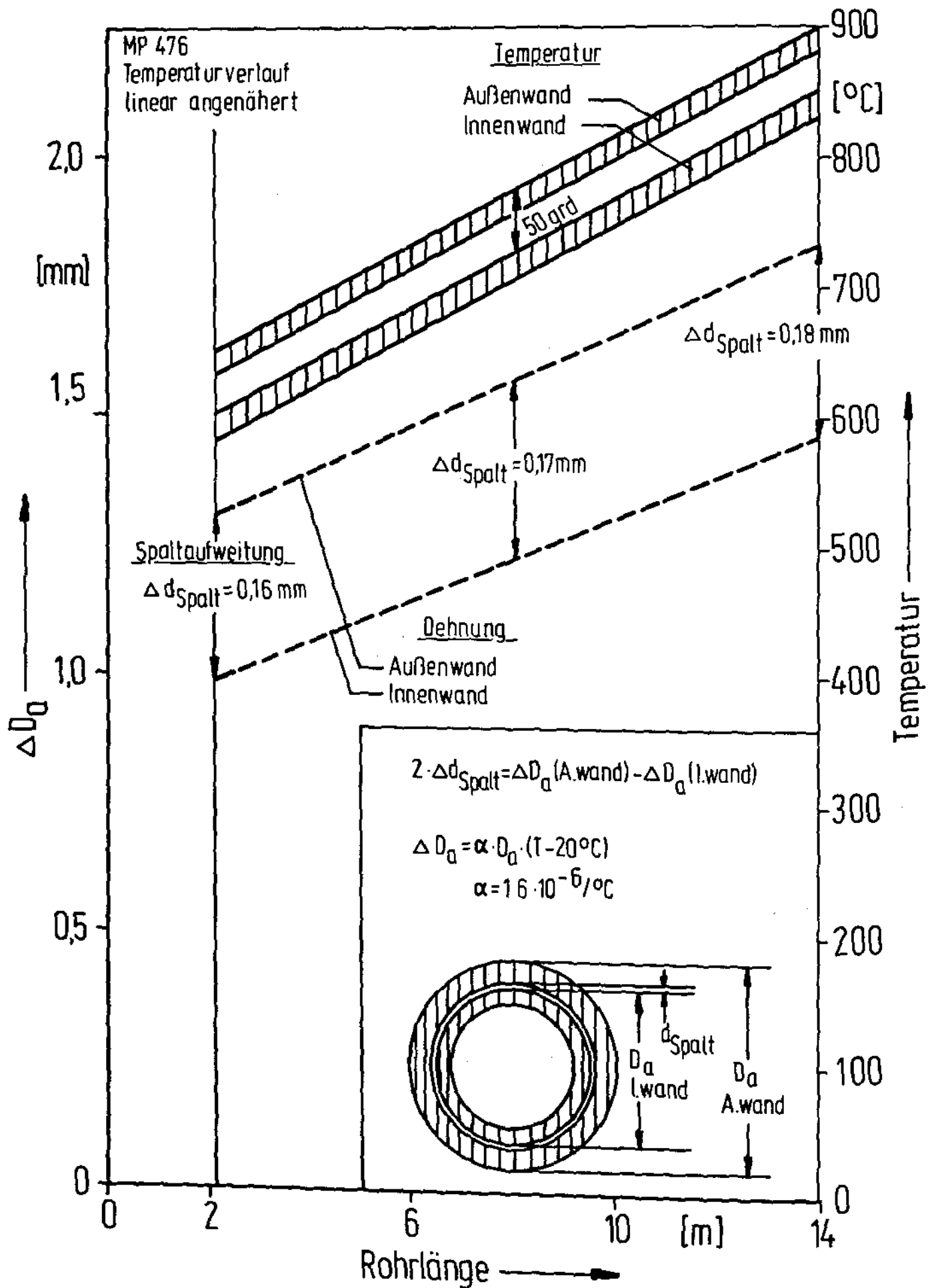


Abb. 19

Spaltaufweitung infolge unterschiedlicher Dehnung der
DUPLEX-Rohrwände

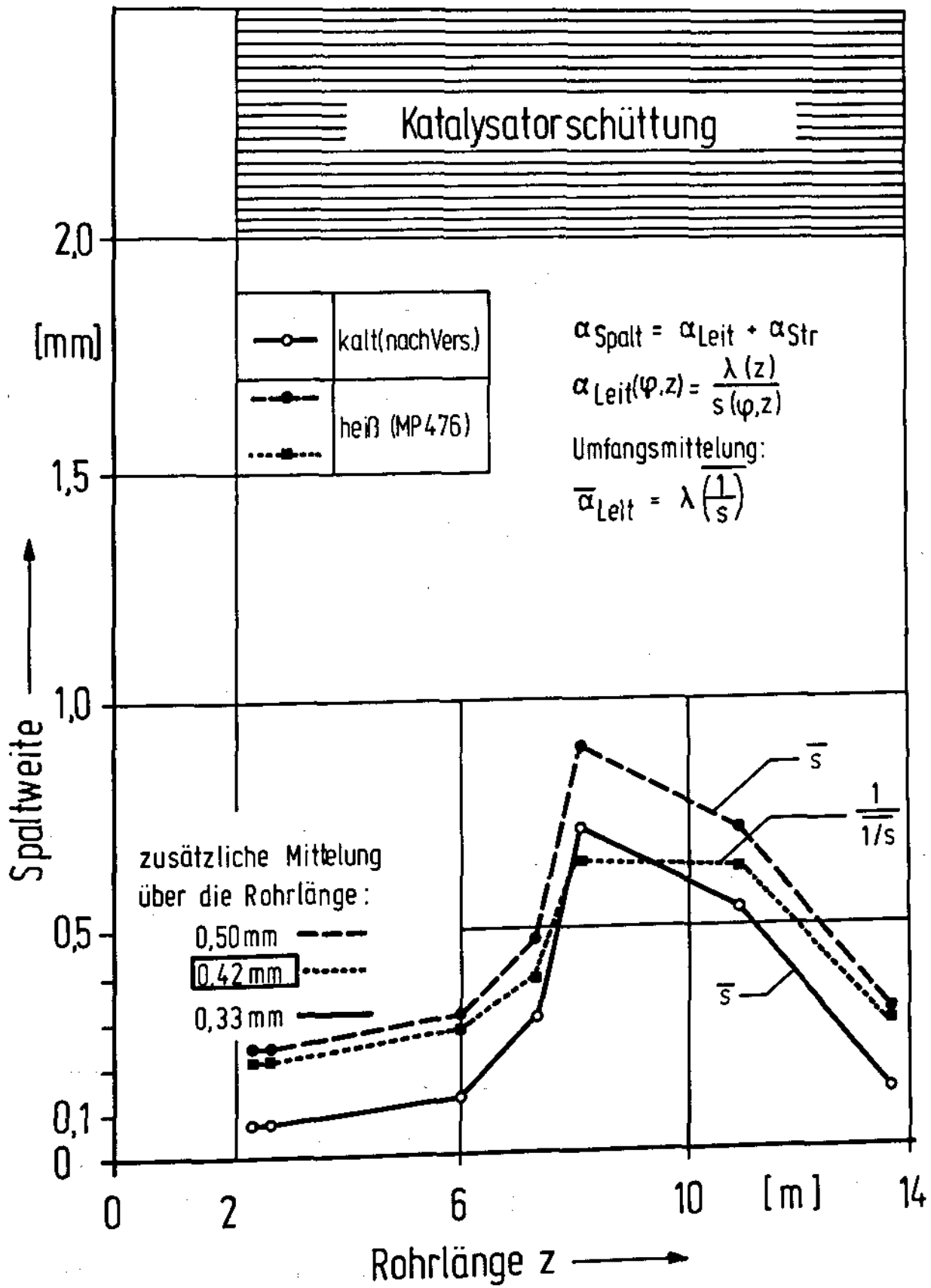


Abb. 20 Mittlere Spaltweiten über der Rohrlänge

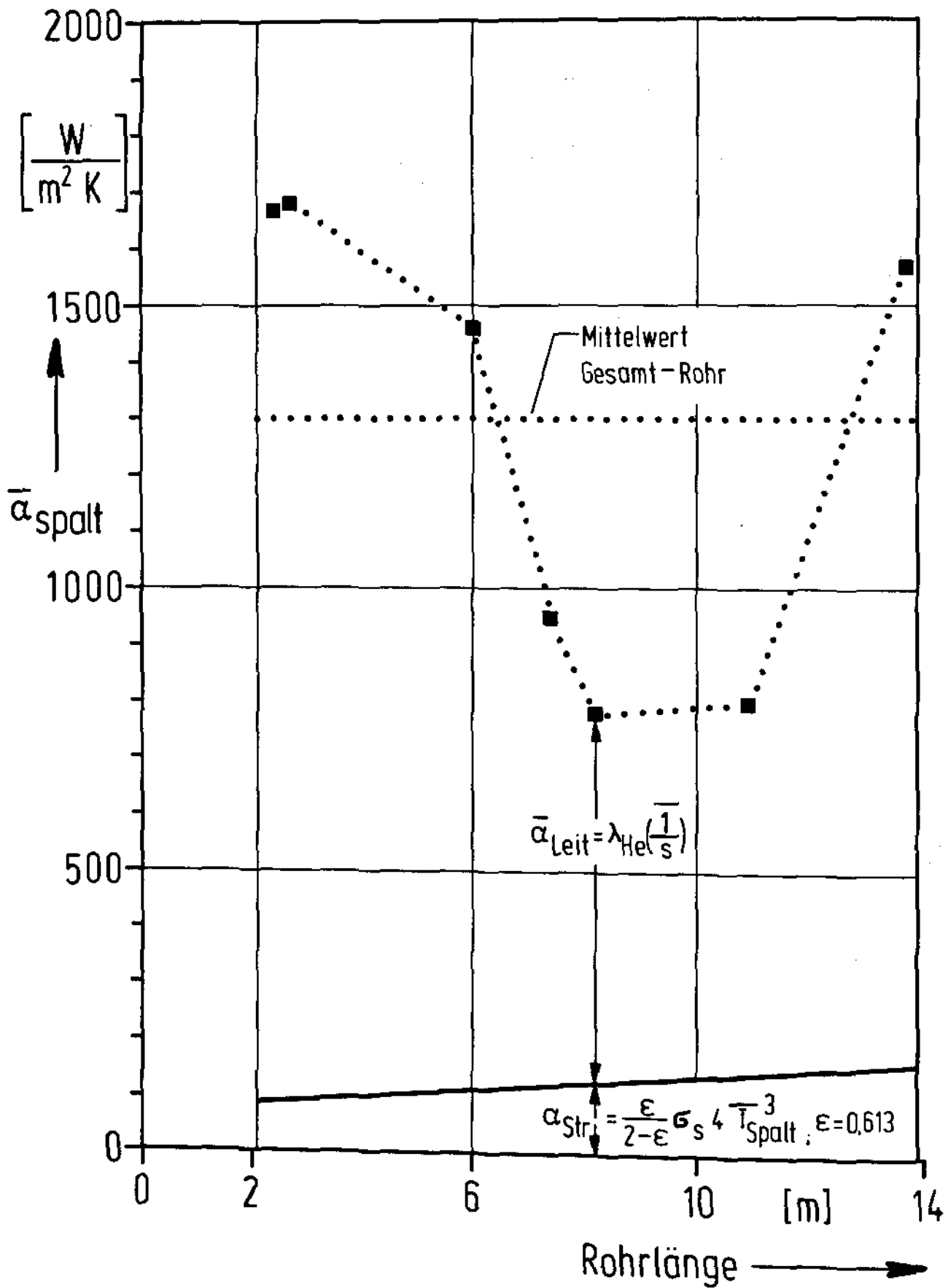


Abb. 21 Berechnete mittlere Wärmeübergangszahlen des DUPLEX-Rohrspaltes (für Temperaturprofil des MP 476)

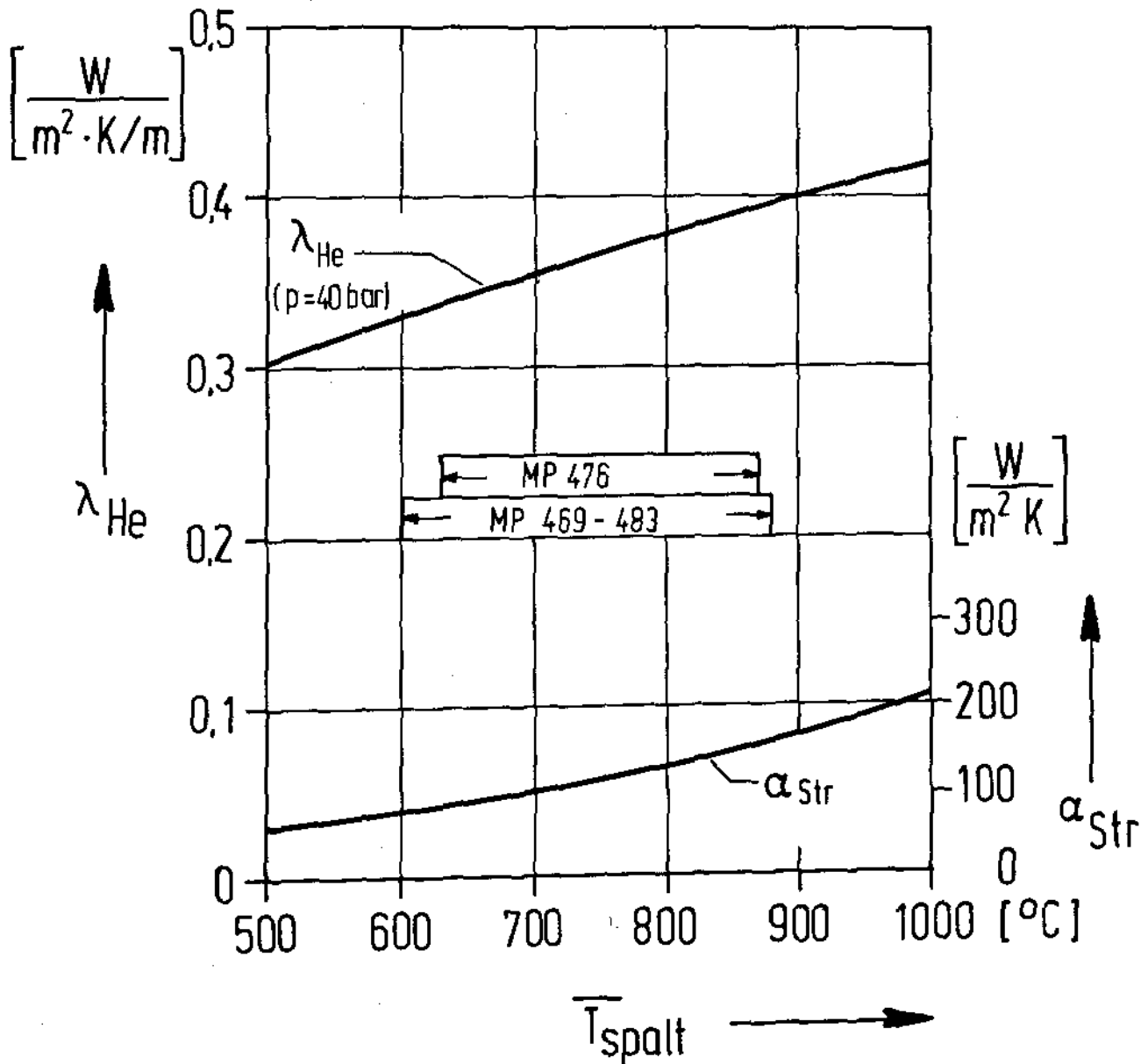
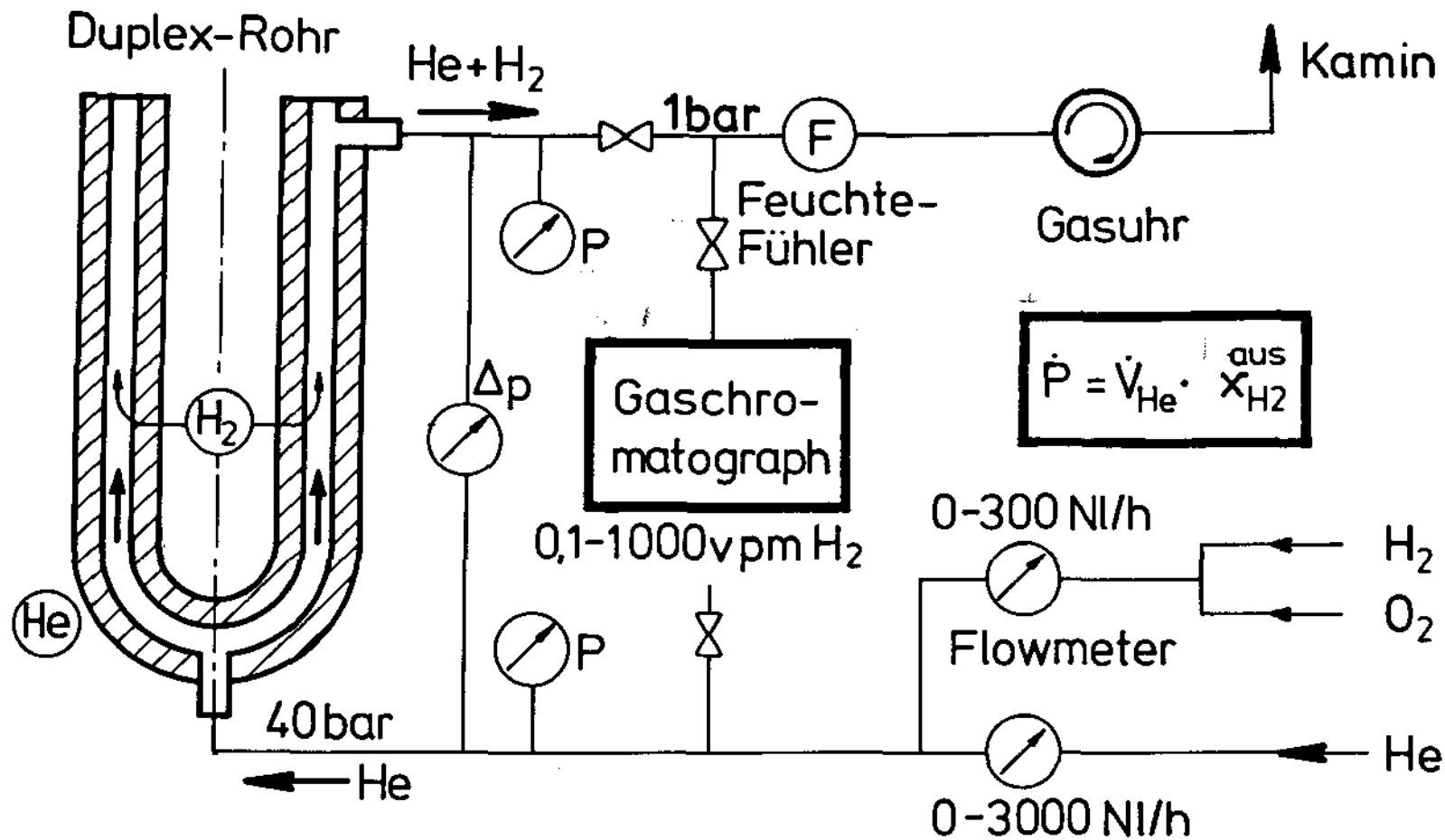
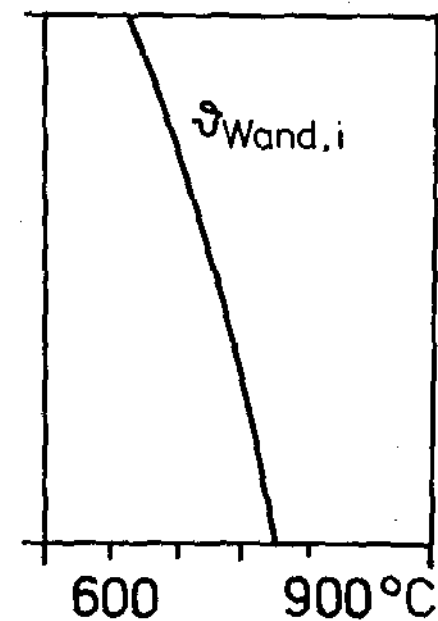
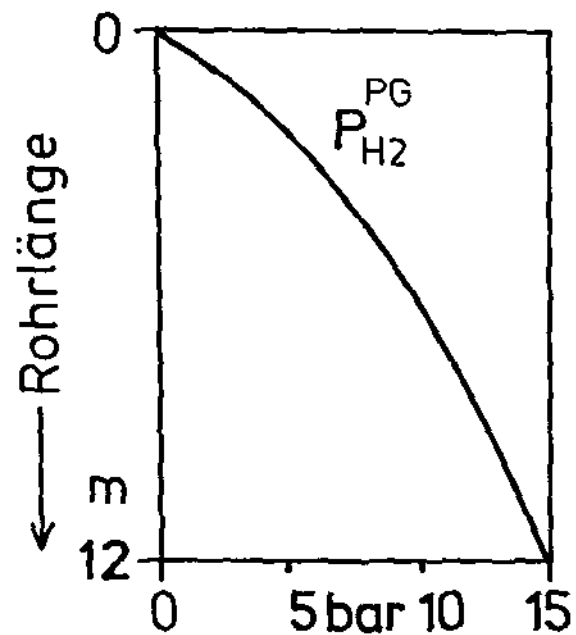
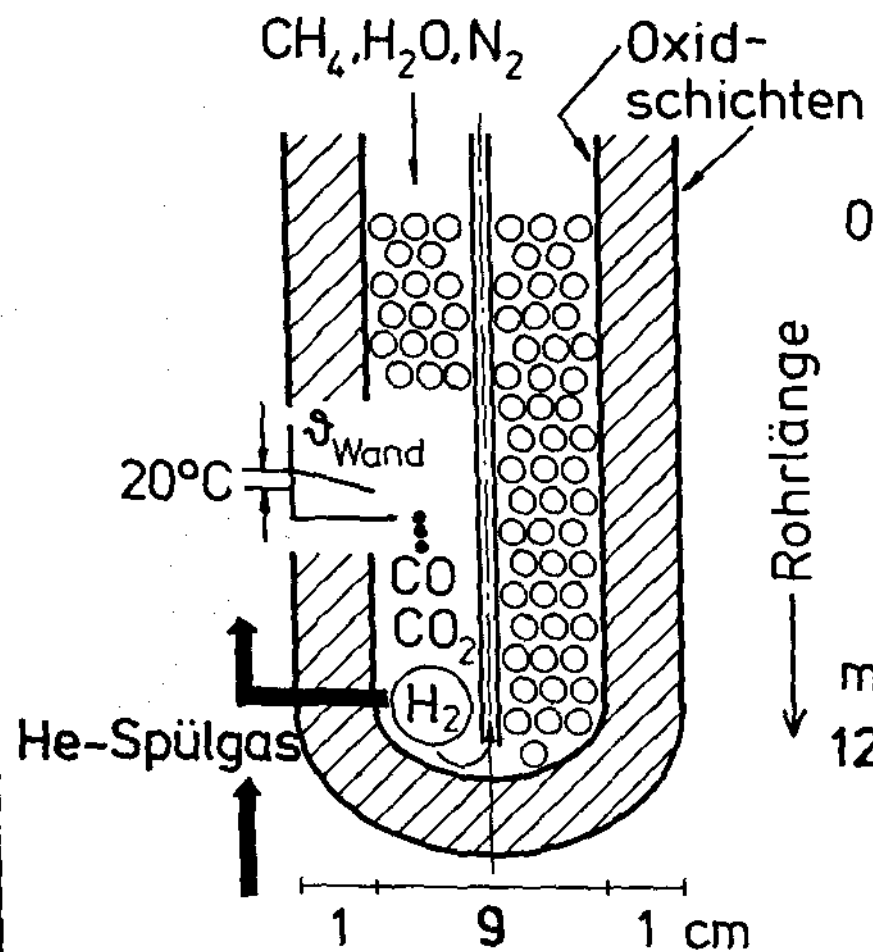


Abb. 22 Wärmeleitfähigkeit des Heliums und Wärmestrahlungsanteil
als Funktion der mittleren Temperatur im Spalt



Schematische Darstellung der Meßanordnung zur Ermittlung des H_2 -Permeationsstroms vom Prozeßgassystem durch das innere Rohr bis ins Spülgas

Abb.2 3



MFA

Charakteristische Bedingungen der
H-Permeation durch das innere Rohr

Abb. 24

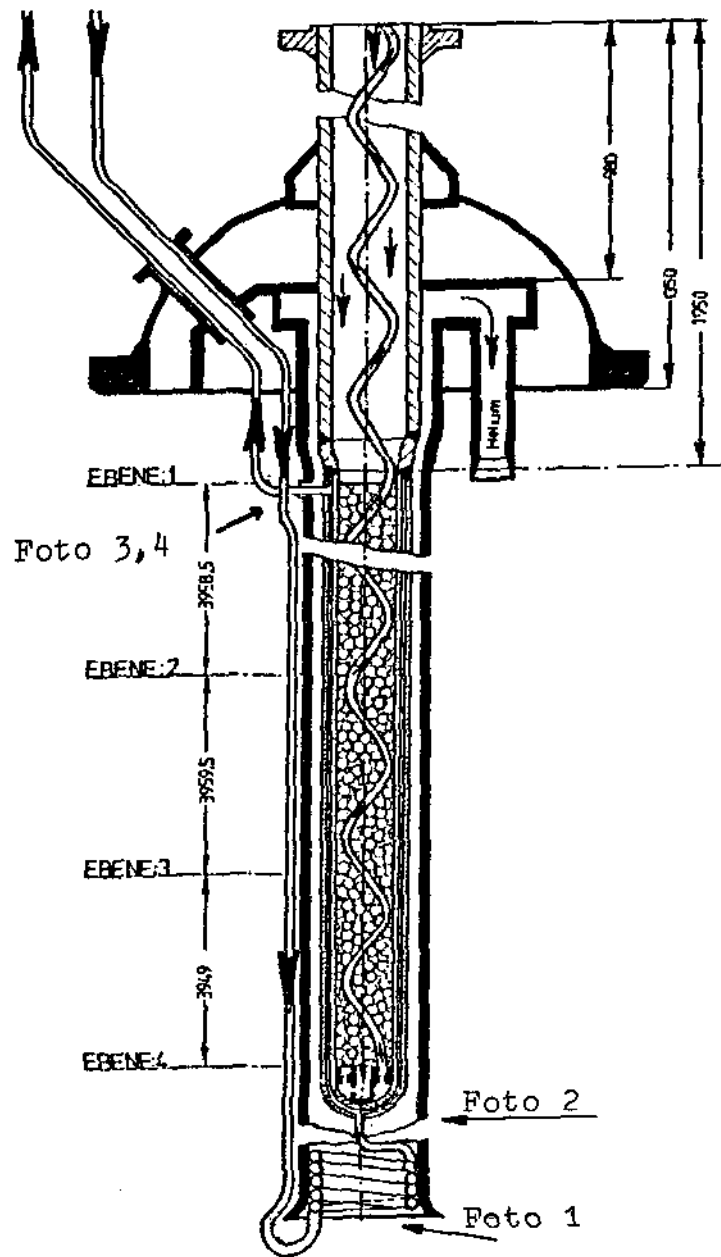
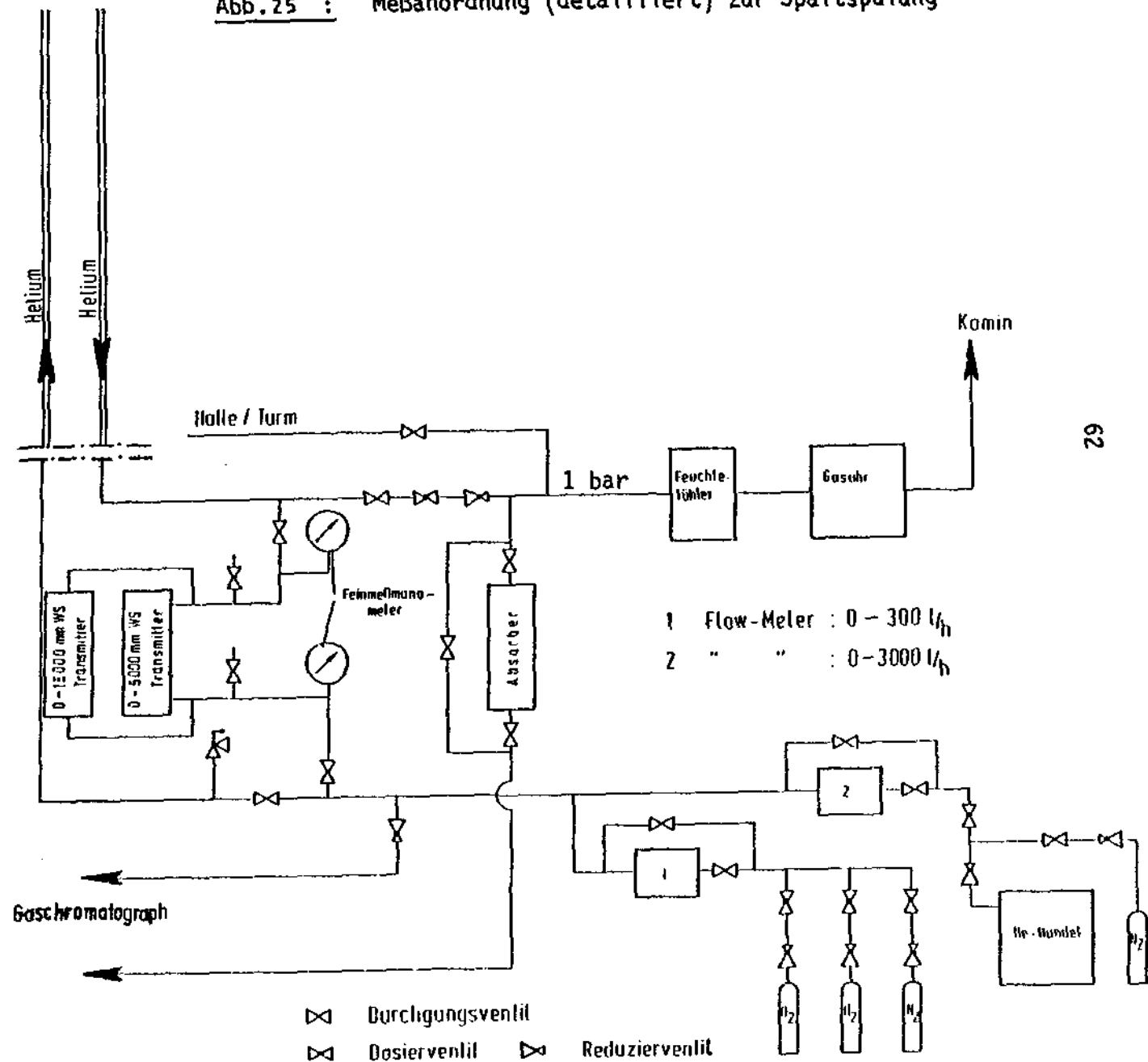


Abb.25 : Meßanordnung (detailliert) zur Spaltspülung



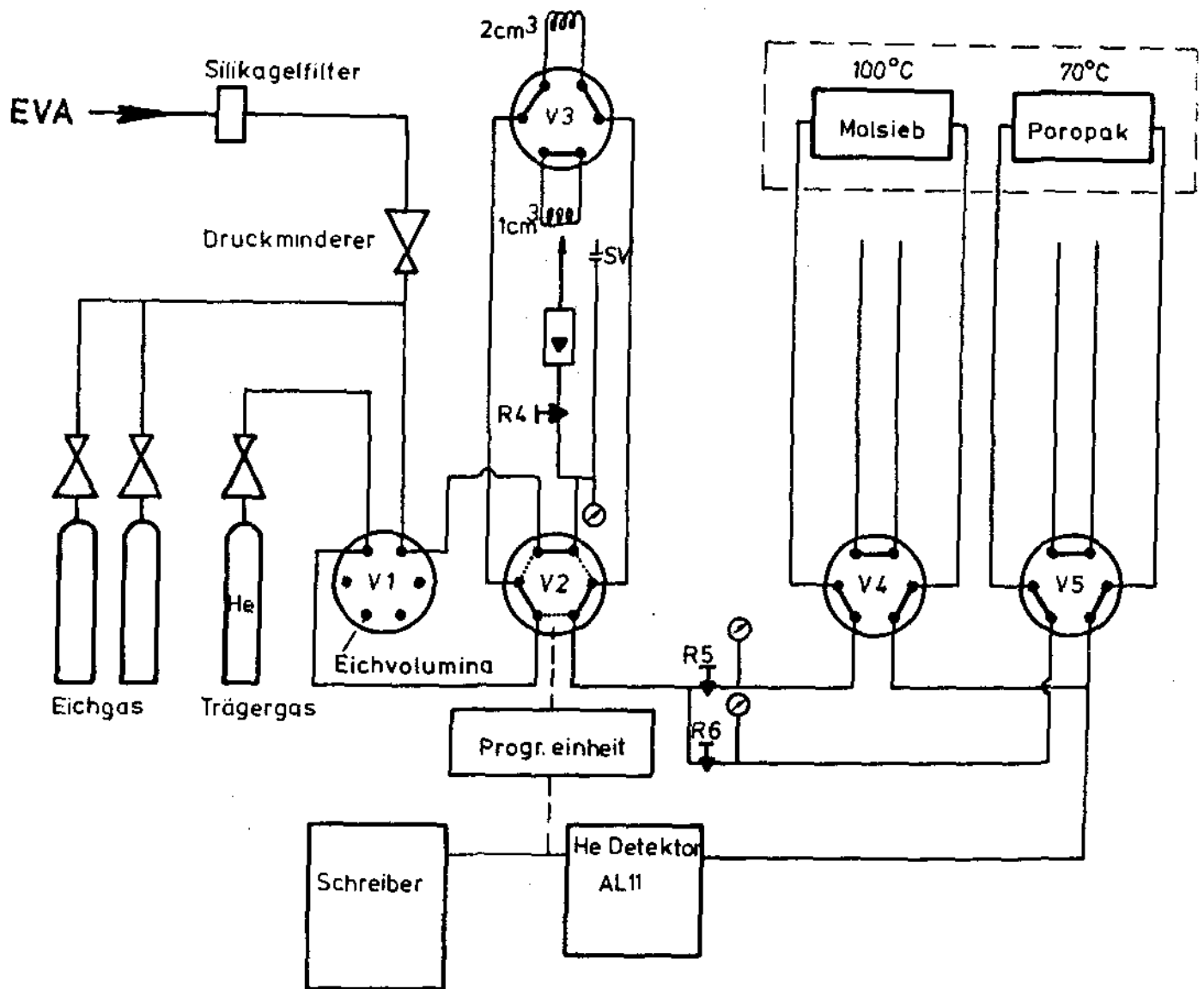


Abb.26 : Schaltschema Gaschromatograph, Ventilstellung V2: — Messen
.....Spülen

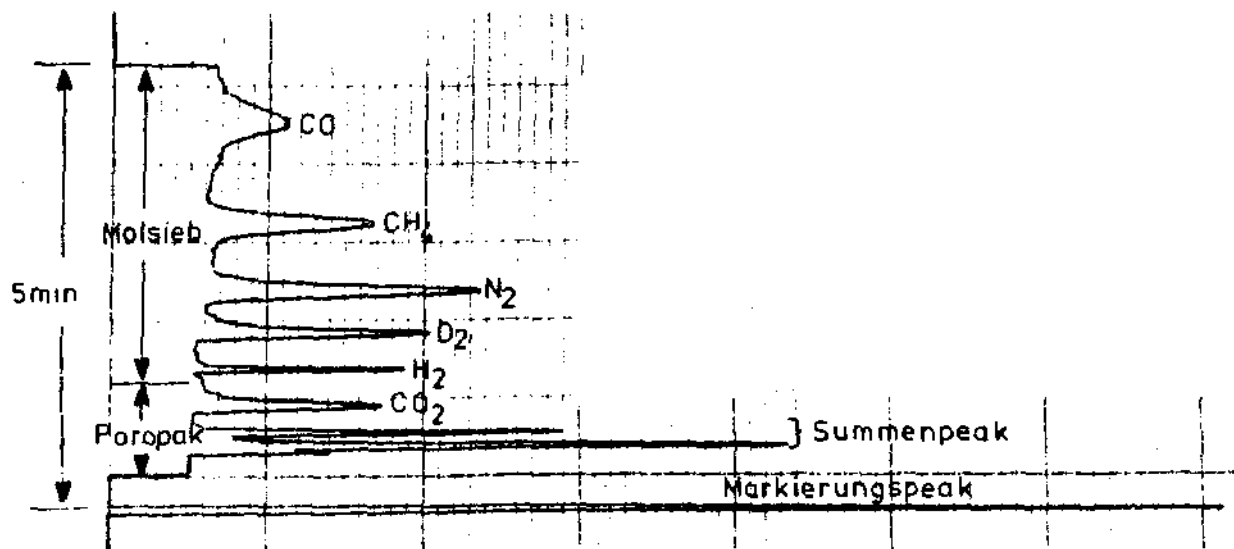


Abb.27 : Gaschromatogramm: 5 vpm Fremdgase jeweils

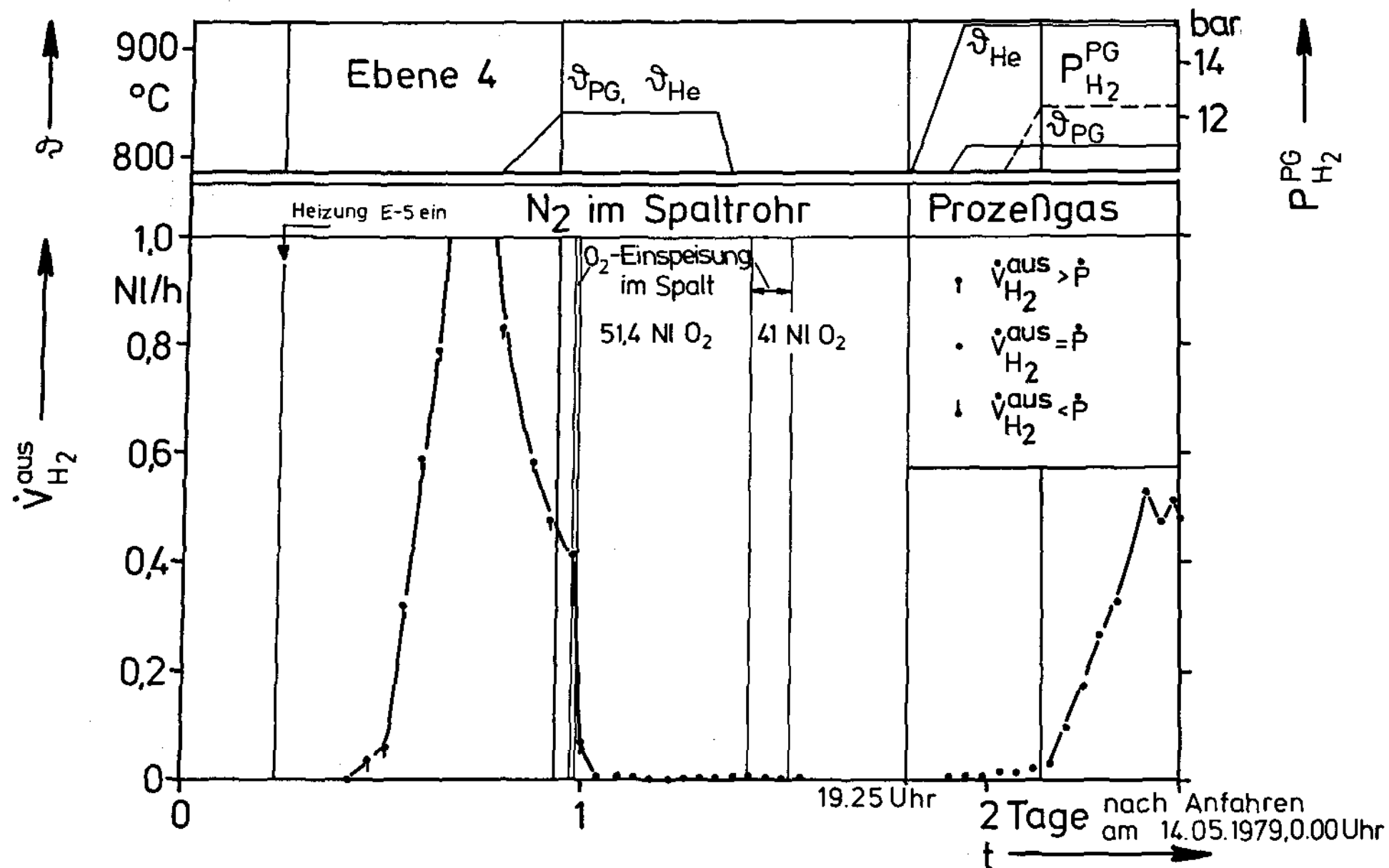
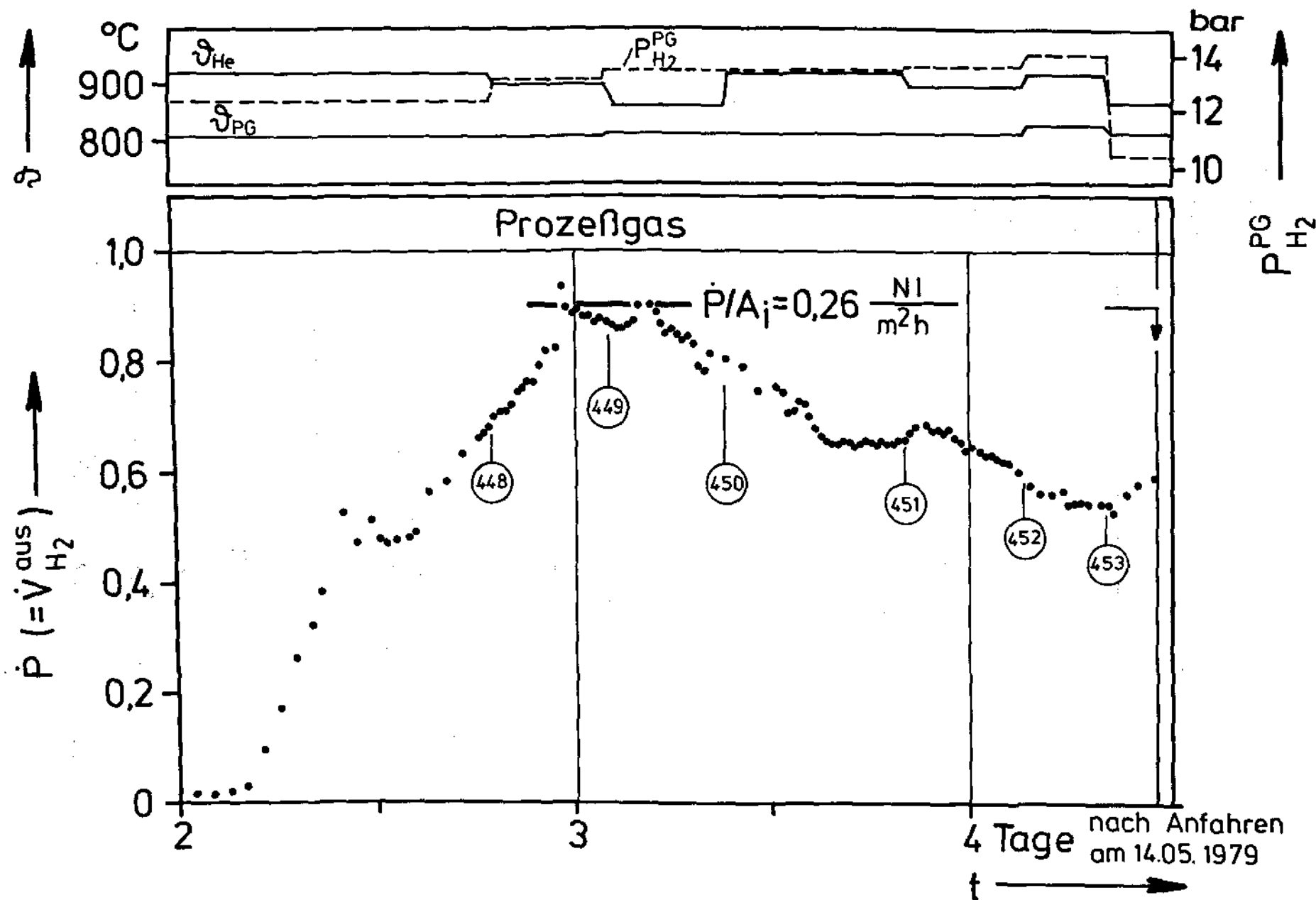


Abb. 28a: Zeitverlauf des H_2 -Stroms $\dot{V}_{\text{H}_2}^{\text{aus}}$ am Spalt-Austritt



KFA

Zeitverlauf des H_2 -Permeationsstroms \dot{P}

Abb. 28b

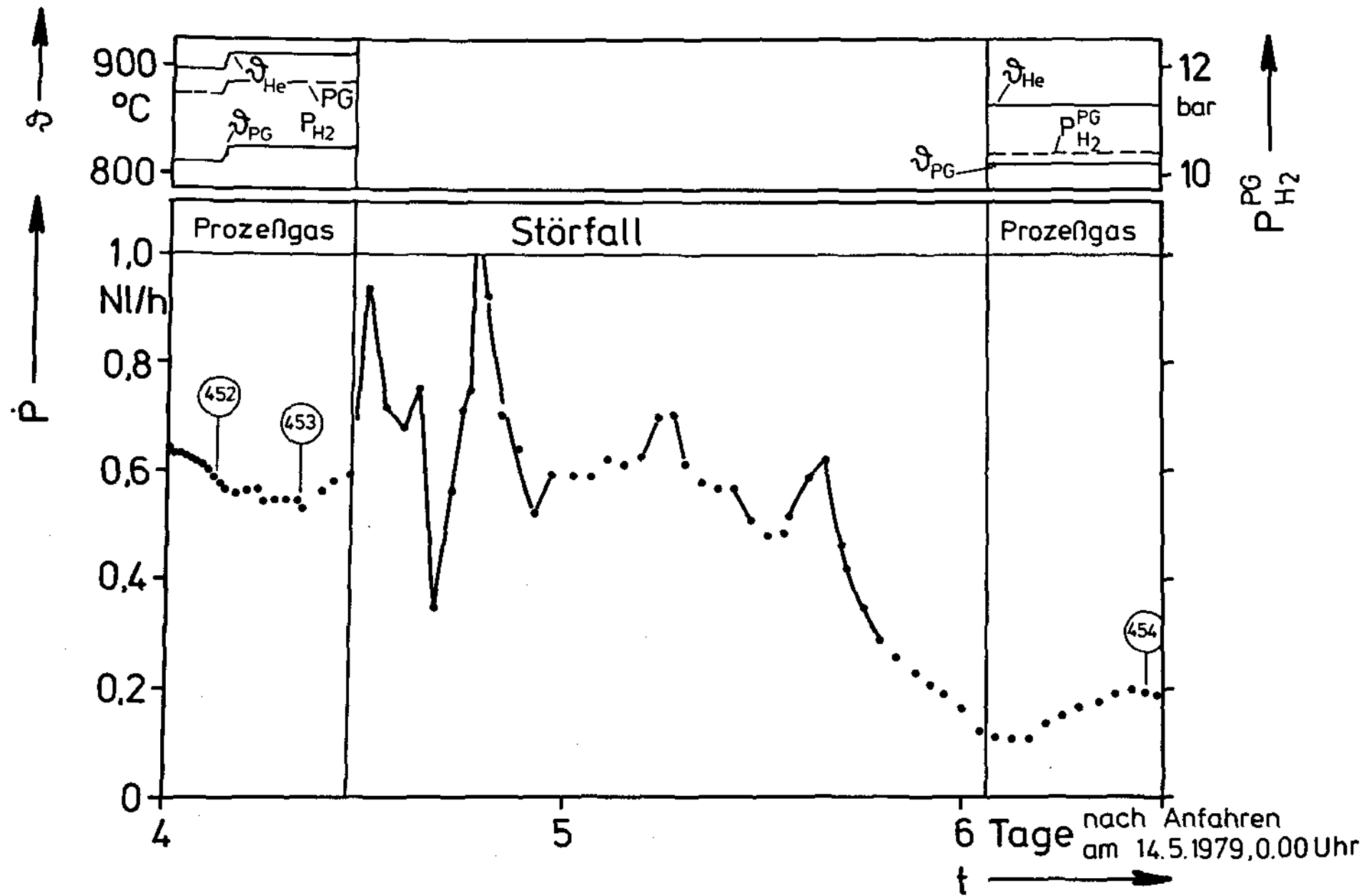


Abb. 28 c: Zeitverlauf des H₂ - Permeationsstroms \dot{P} ($= \dot{V}_{H_2}^{aus}$)

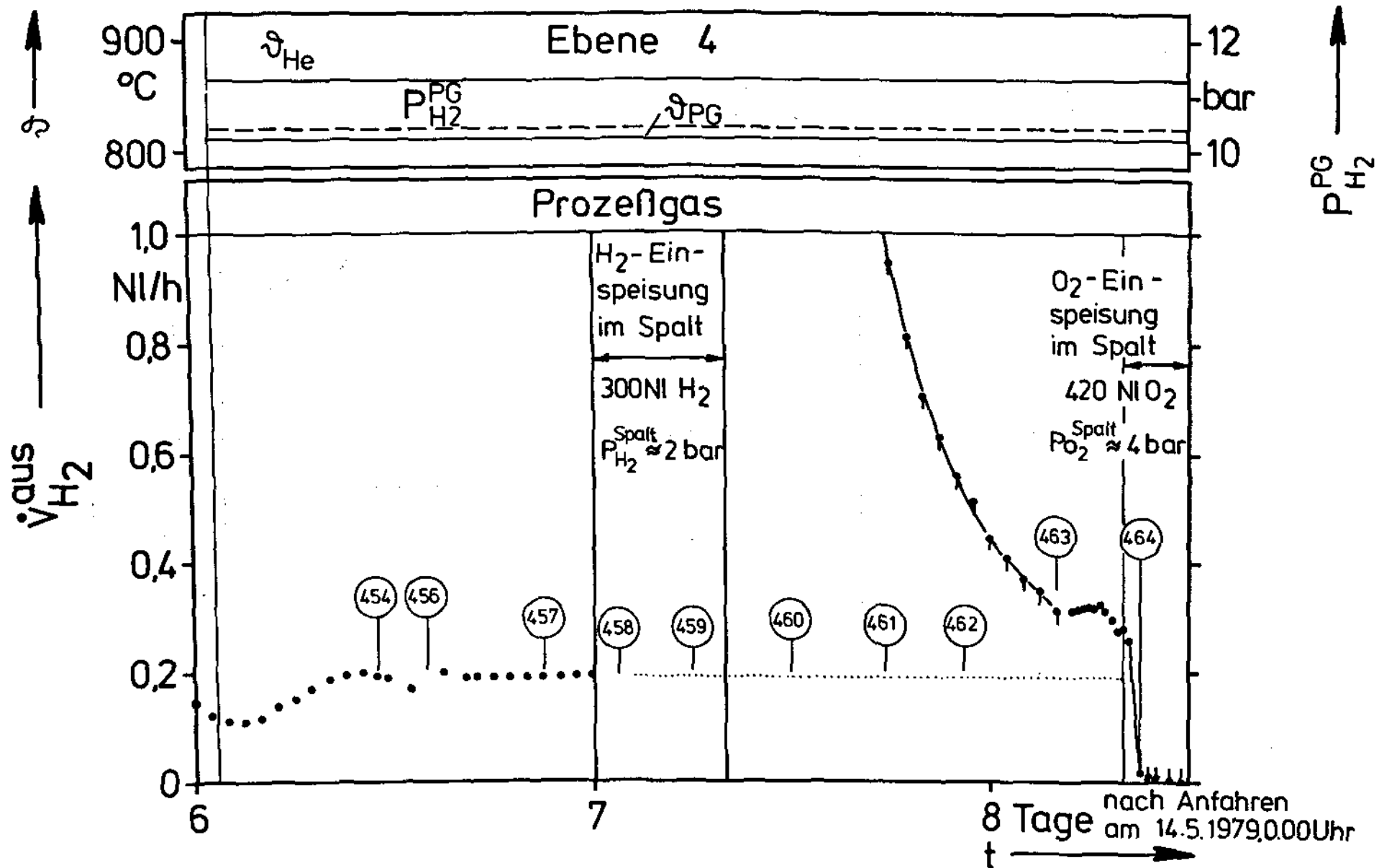


Abb. 28 d: Zeitverlauf des H₂-Stroms $\dot{V}_{\text{H}_2}^{\text{aus}}$ am Spaltaustritt

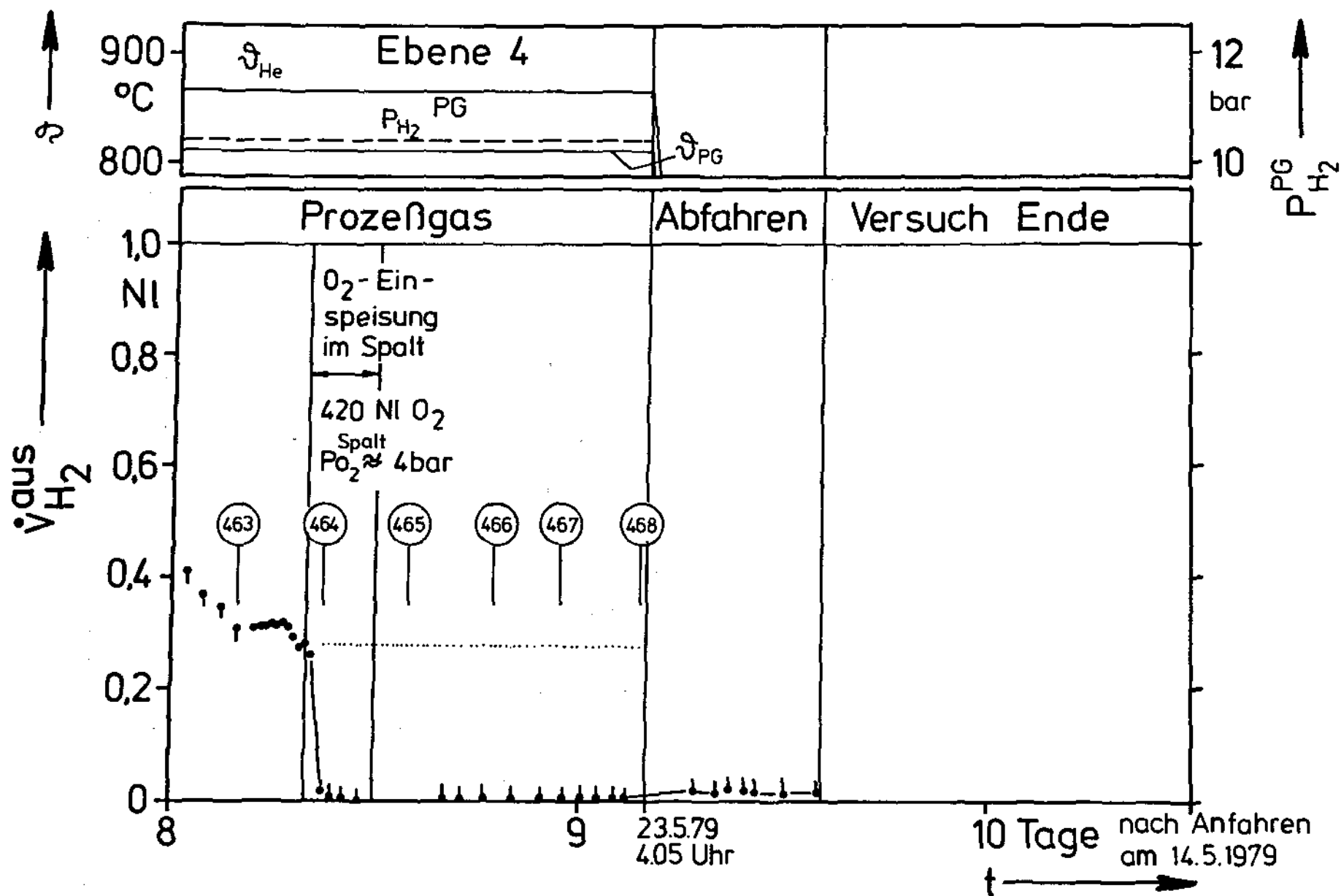


Abb.28 e : Zeitverlauf des H_2 -Stroms $\dot{V}_{\text{H}_2}^{\text{aus}}$ am Spaltaustritt

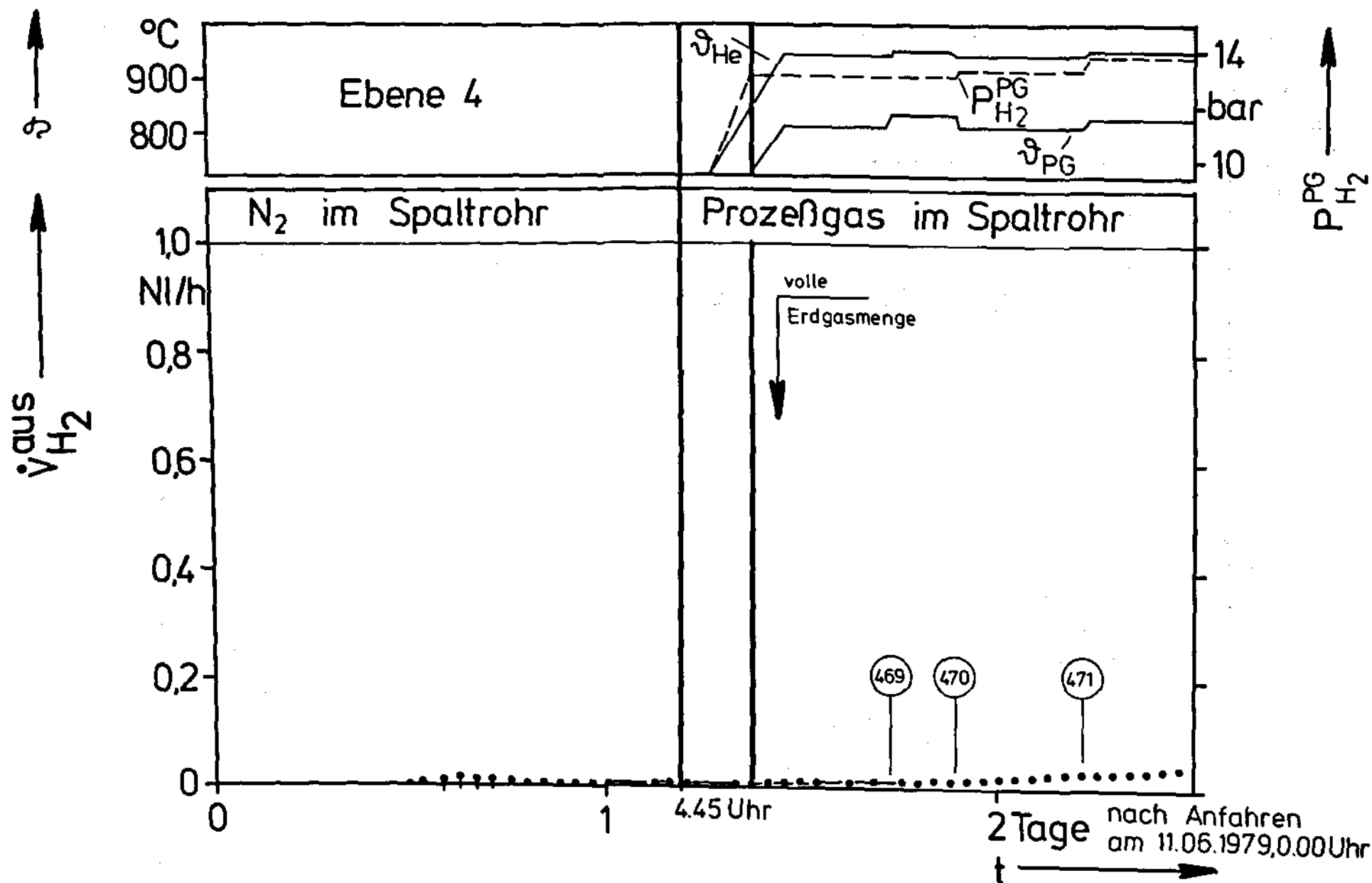


Abb.29 a: Zeitverlauf des H_2 -Stroms $\dot{V}_{\text{H}_2}^{\text{aus}}$ am Spaltaustritt

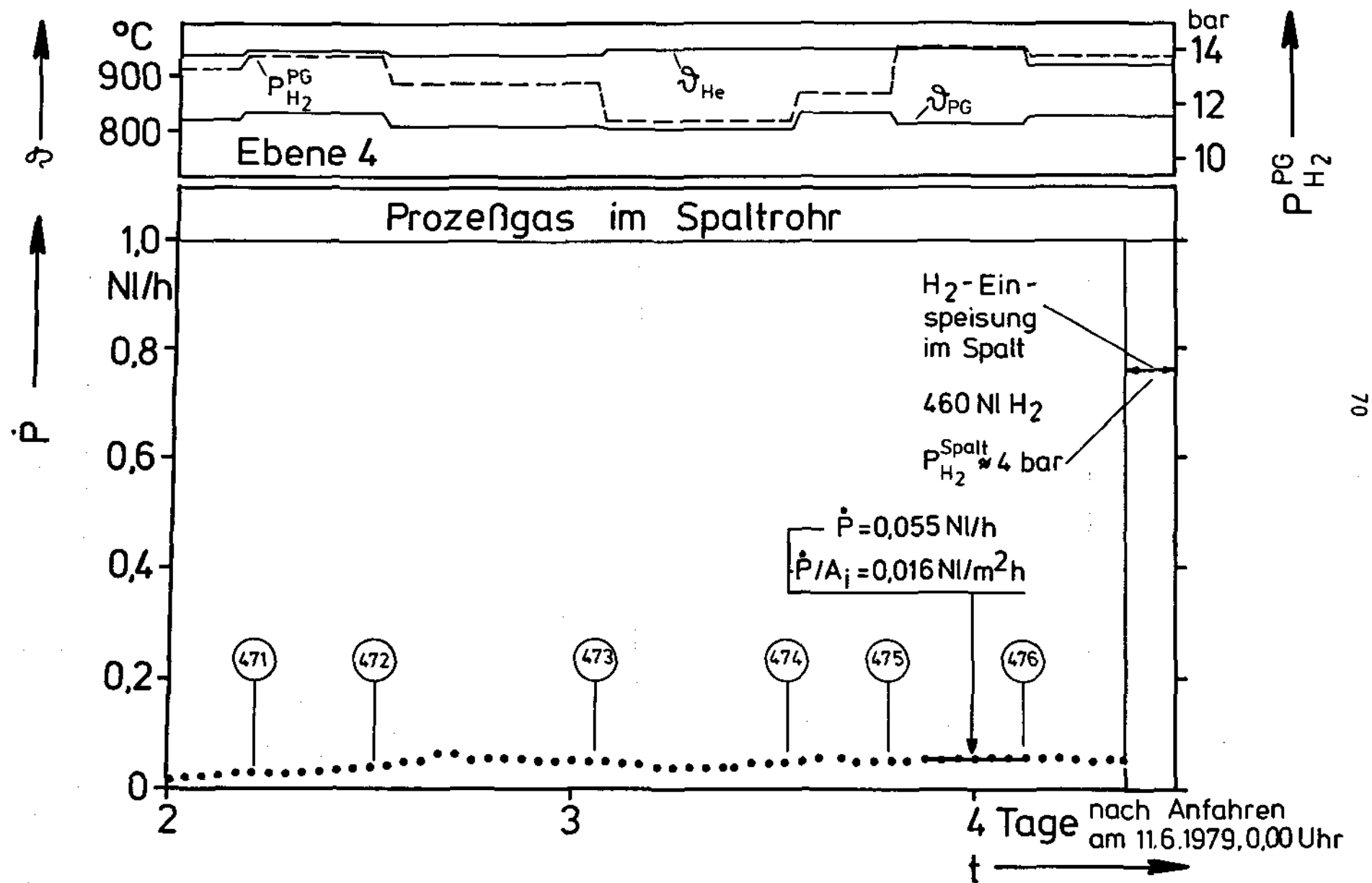


Abb.29 b: Zeitverlauf des H_2 -Permeationsstroms $\dot{P} (= \dot{V}_{\text{H}_2}^{\text{aus}})$

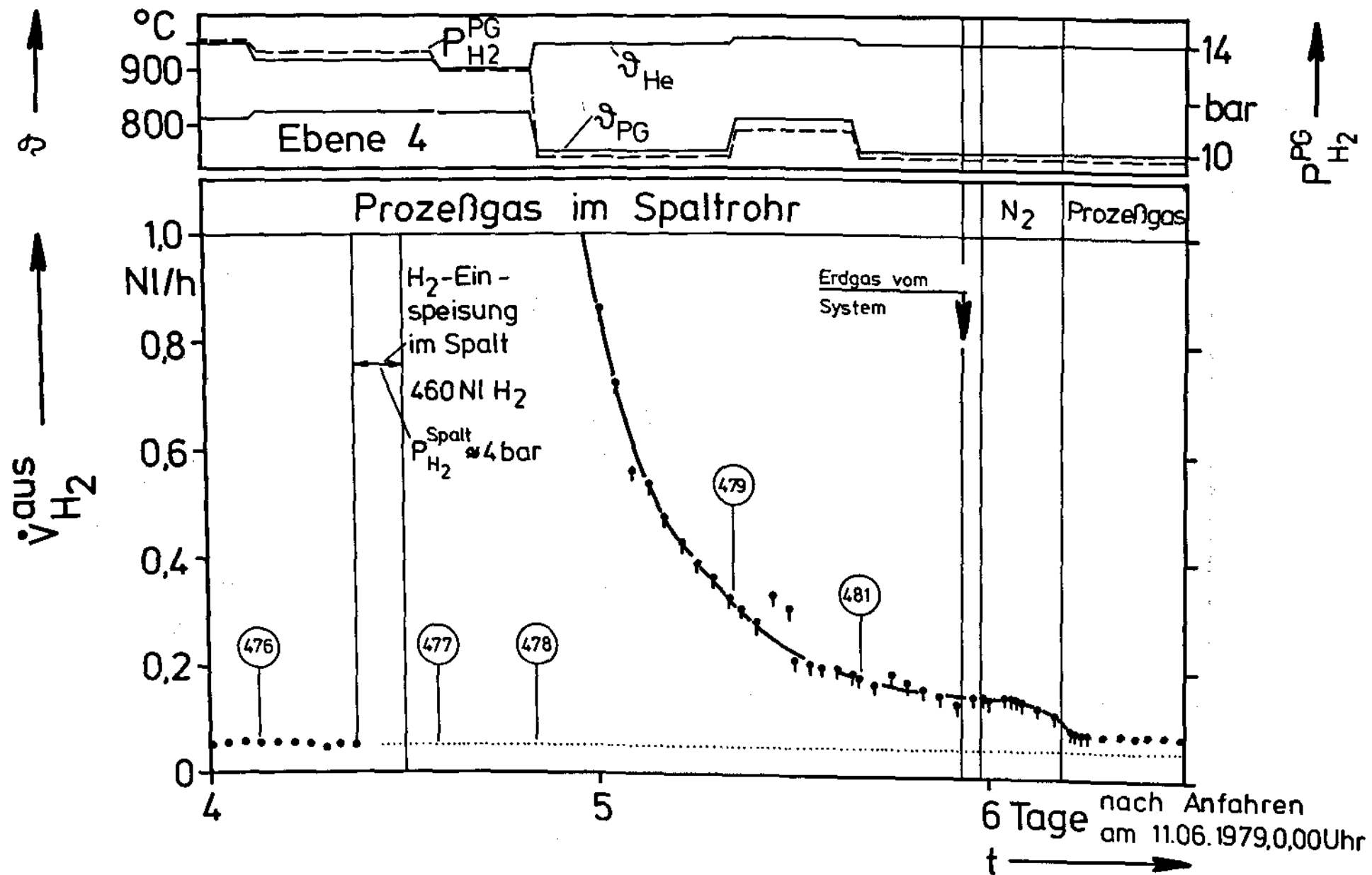


Abb.29 c: Zeitverlauf des H₂-Stroms $\dot{V}_{\text{H}_2}^{\text{aus}}$ am Spaltaustritt

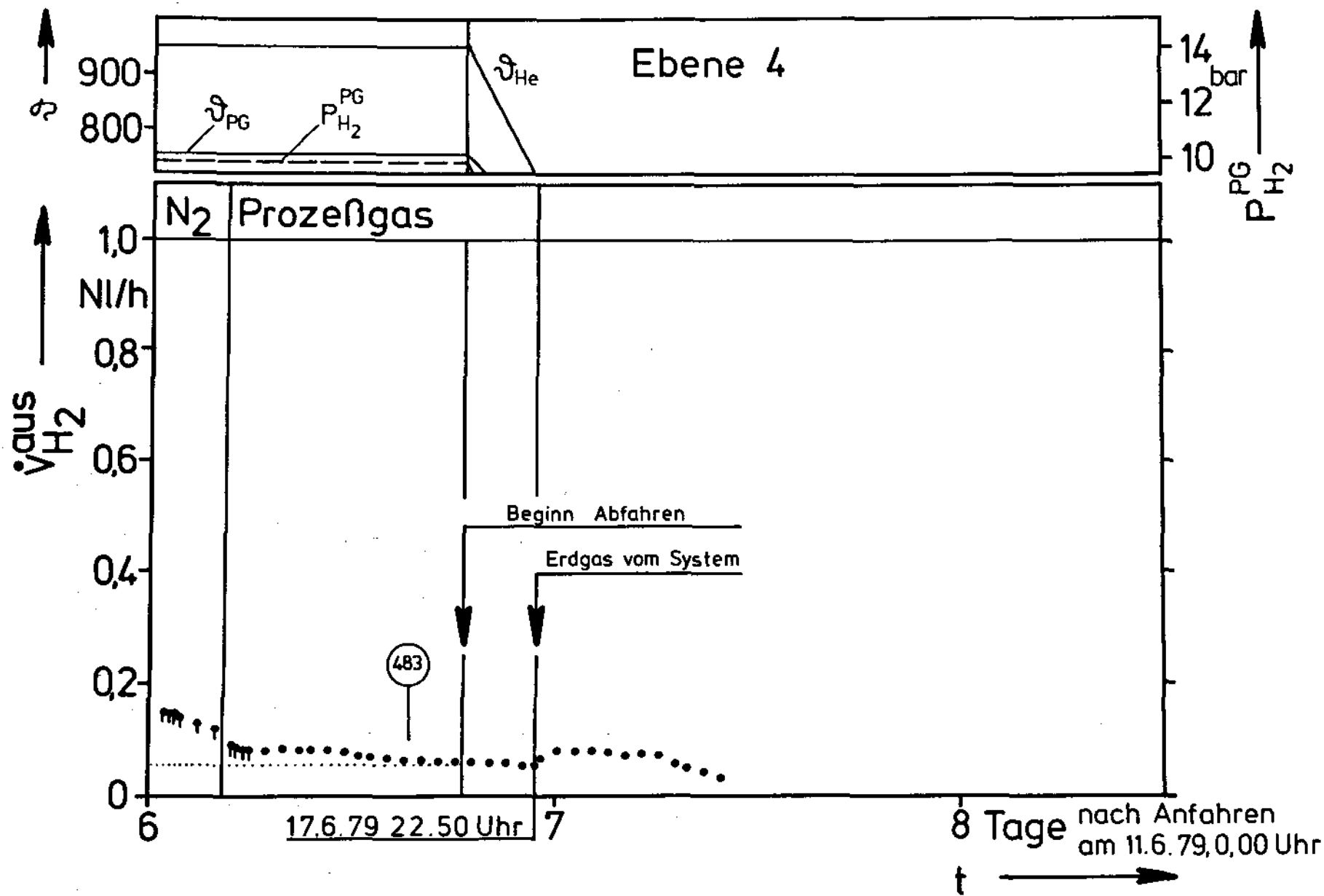
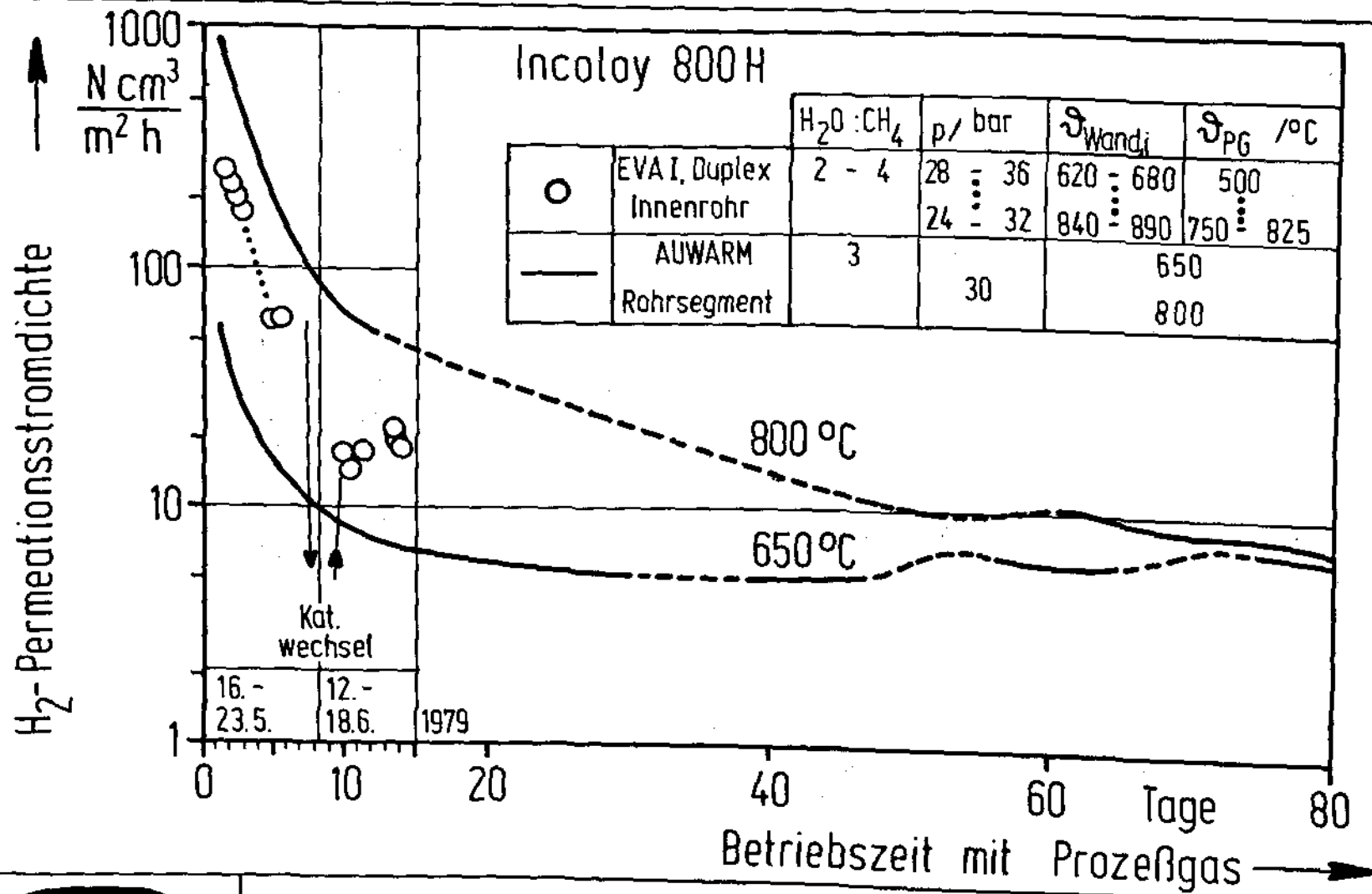


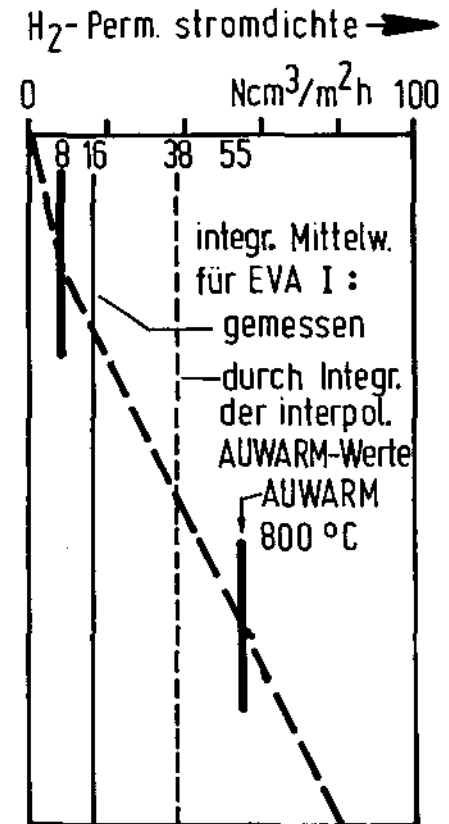
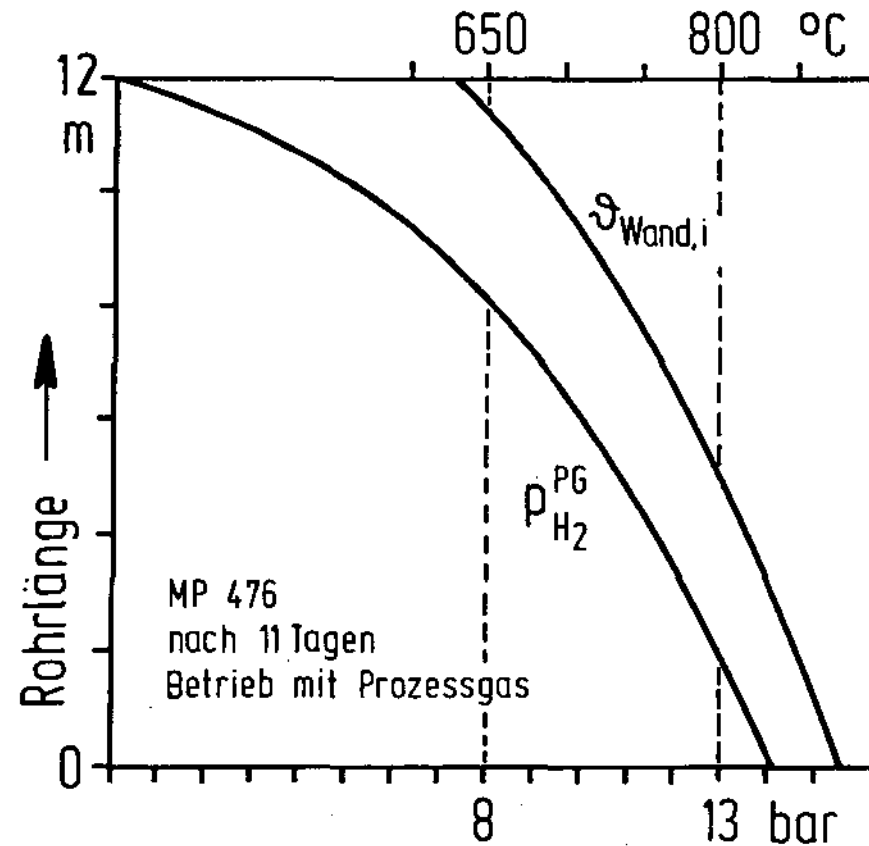
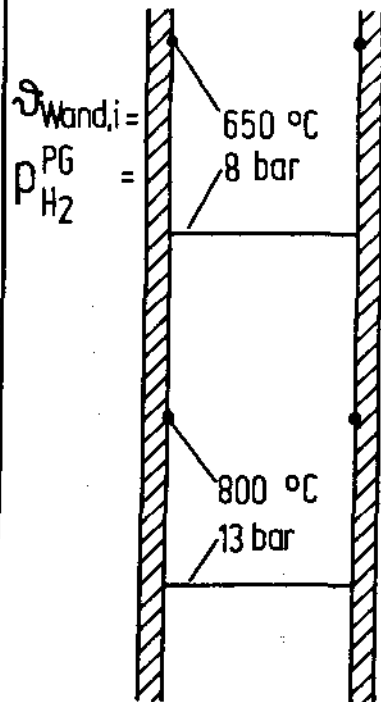
Abb.29 d: Zeitverlauf des H_2 -Stroms $\dot{V}_{H_2}^{aus}$ am Spaltaustritt



H - Permeation in EVA I und AUWARM

Abb. 30

Duplex Innenrohr



KFA

Schätzung der H₂-Permeationsrate in EVA I
mit AUWARM-Werten

Abb. 31

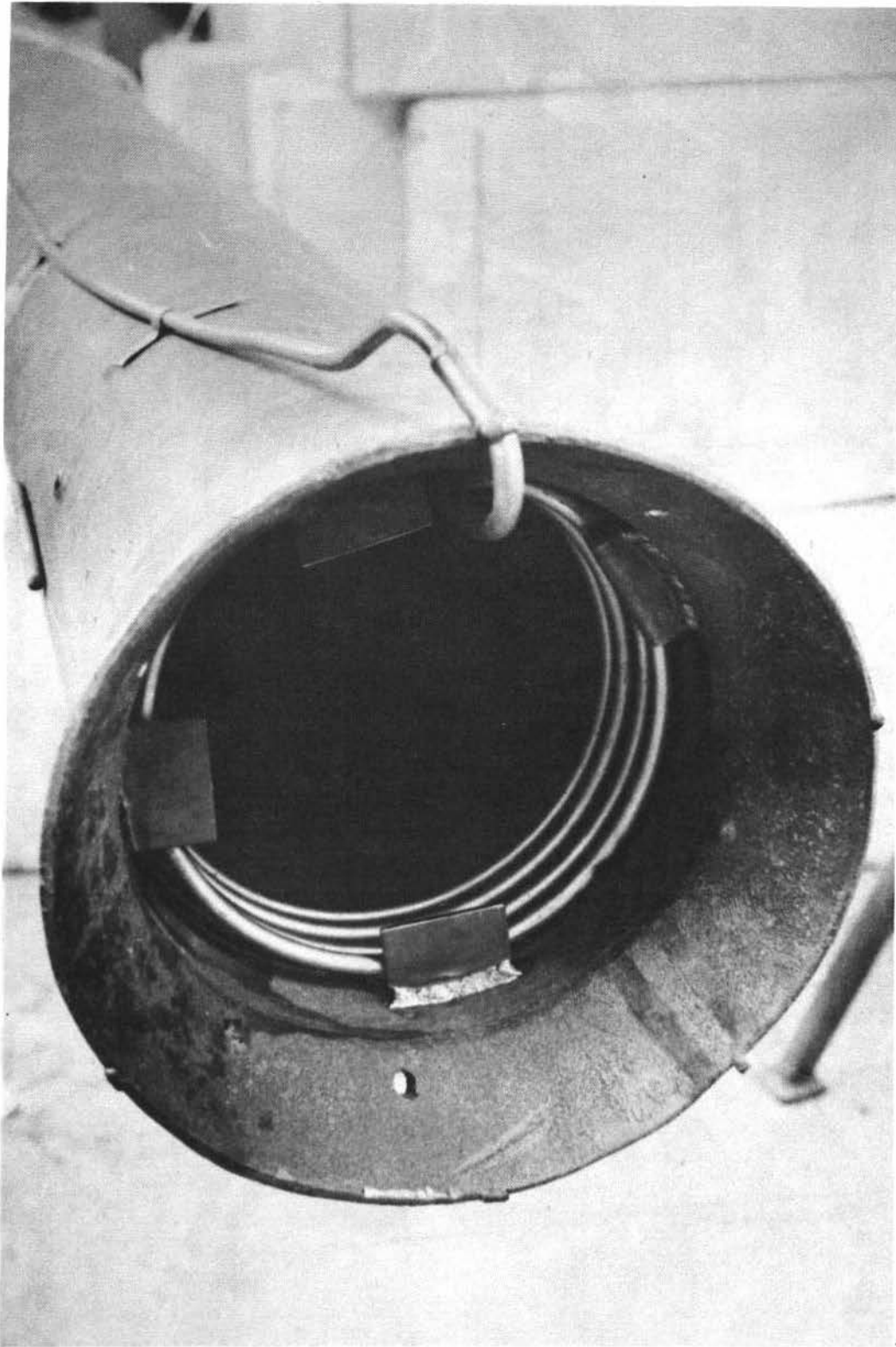


Foto 1:

Einlauföffnung des Helium-Gasführungsrohres mit
Ausdehnungsspirale für die Helium-Spalt-Spülung

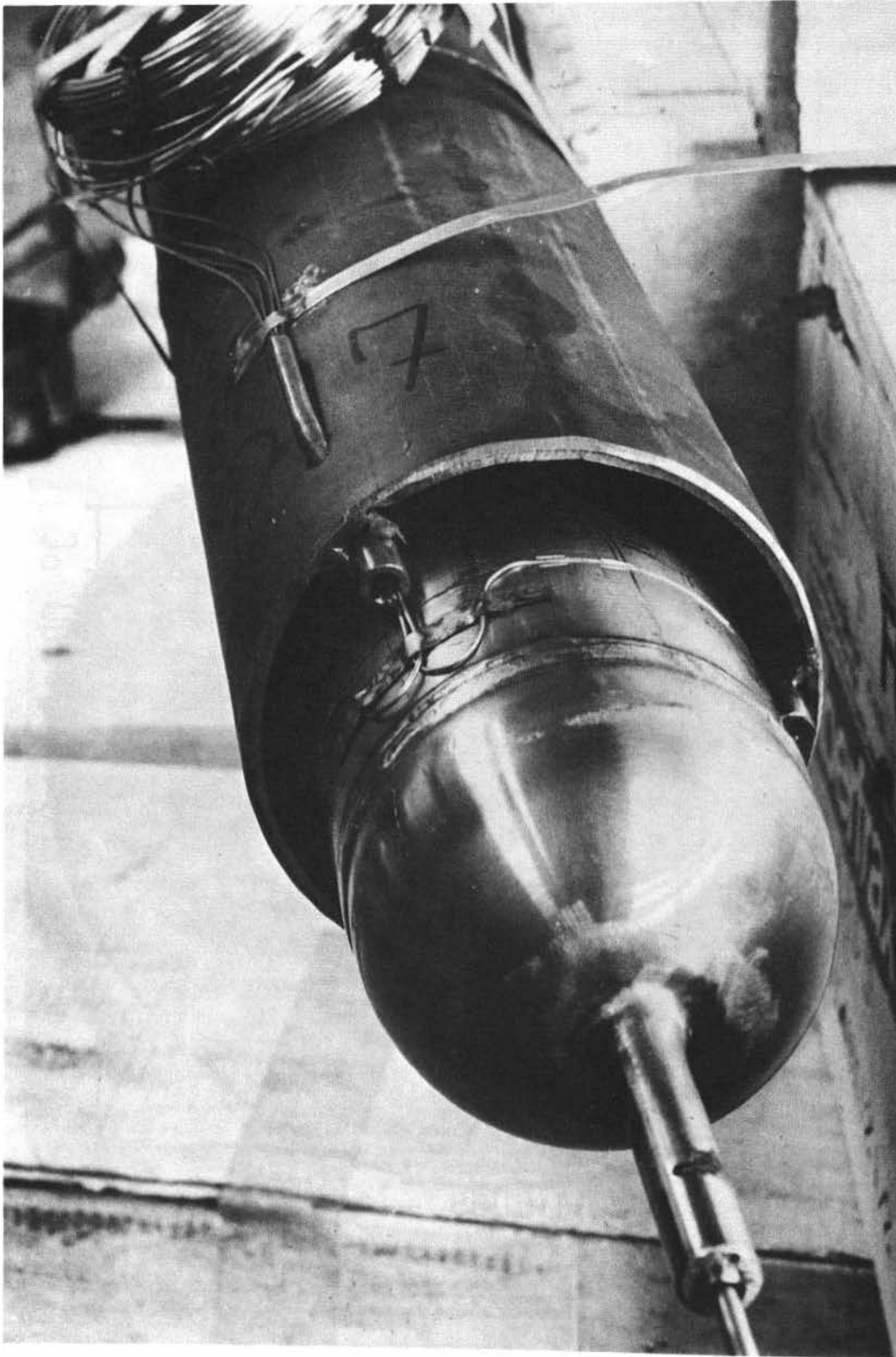


Foto 2: Unteres Ende des Duplex-Rohres mit Eintrittsstutzen und Zuführungsleitung für die Helium-Spülung des Duplex-Rohr-Spaltes. In der Ringnut des Duplex-Rohres und im Ringspalt des Helium-Gasführungsrohres sind die Thermoelemente für die Rohrwand- und Helium-Temperaturmessung angebracht.

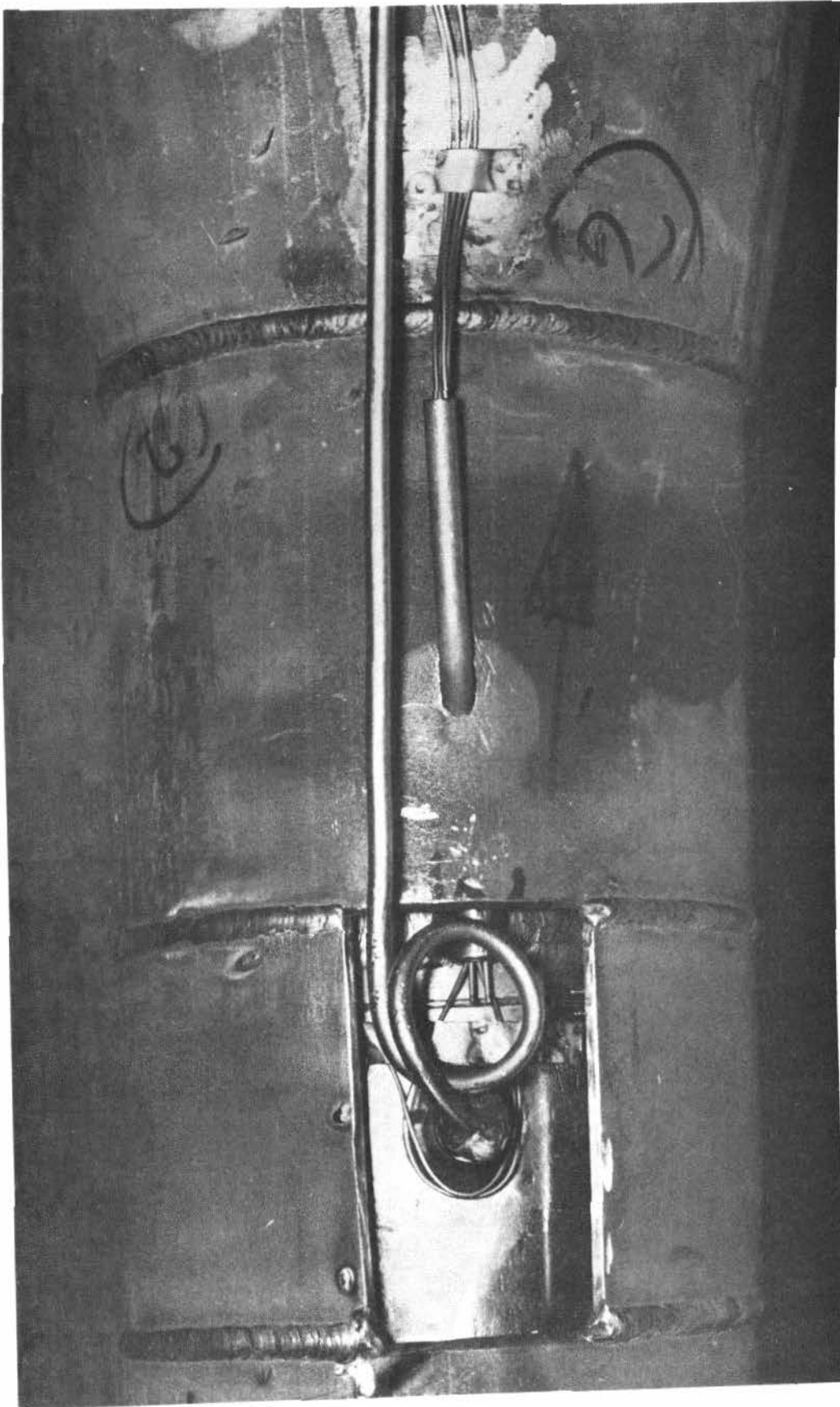


Foto 3: Gasführungsrohr an der Meßebene 1 mit Austrittsleitung für die Helium-Spalt-Spülung des Duplex-Rohres. Die Thermoelemente für die Rohrwand- und Helium-Ringspalt-Temperaturmessung sind durch eine Tauchhülse geführt.

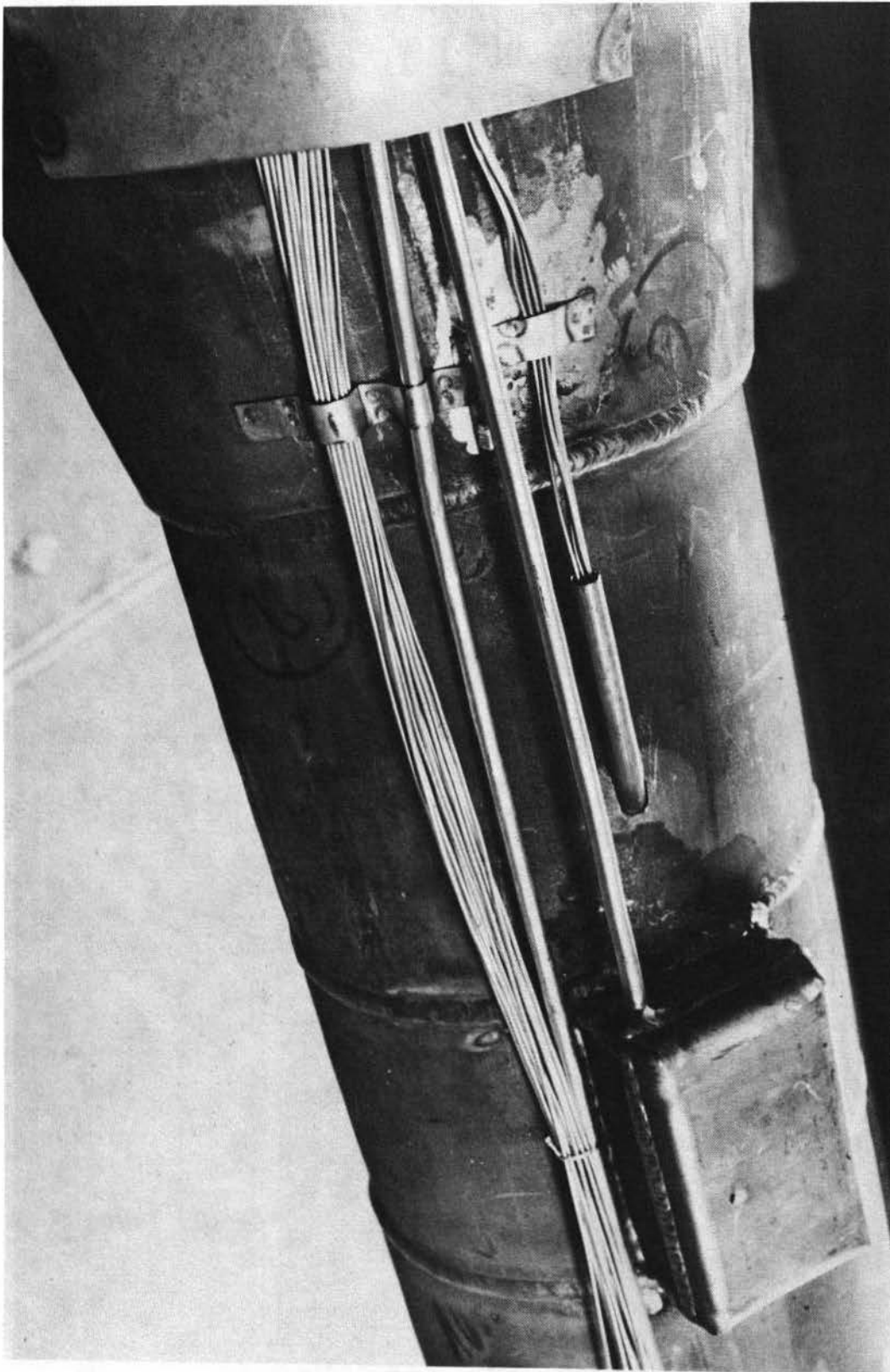


Foto 4:

Das Bild zeigt die Zu- und Abführungsleitung für die Helium-Spalt-Spülung des Duplex-Rohres.

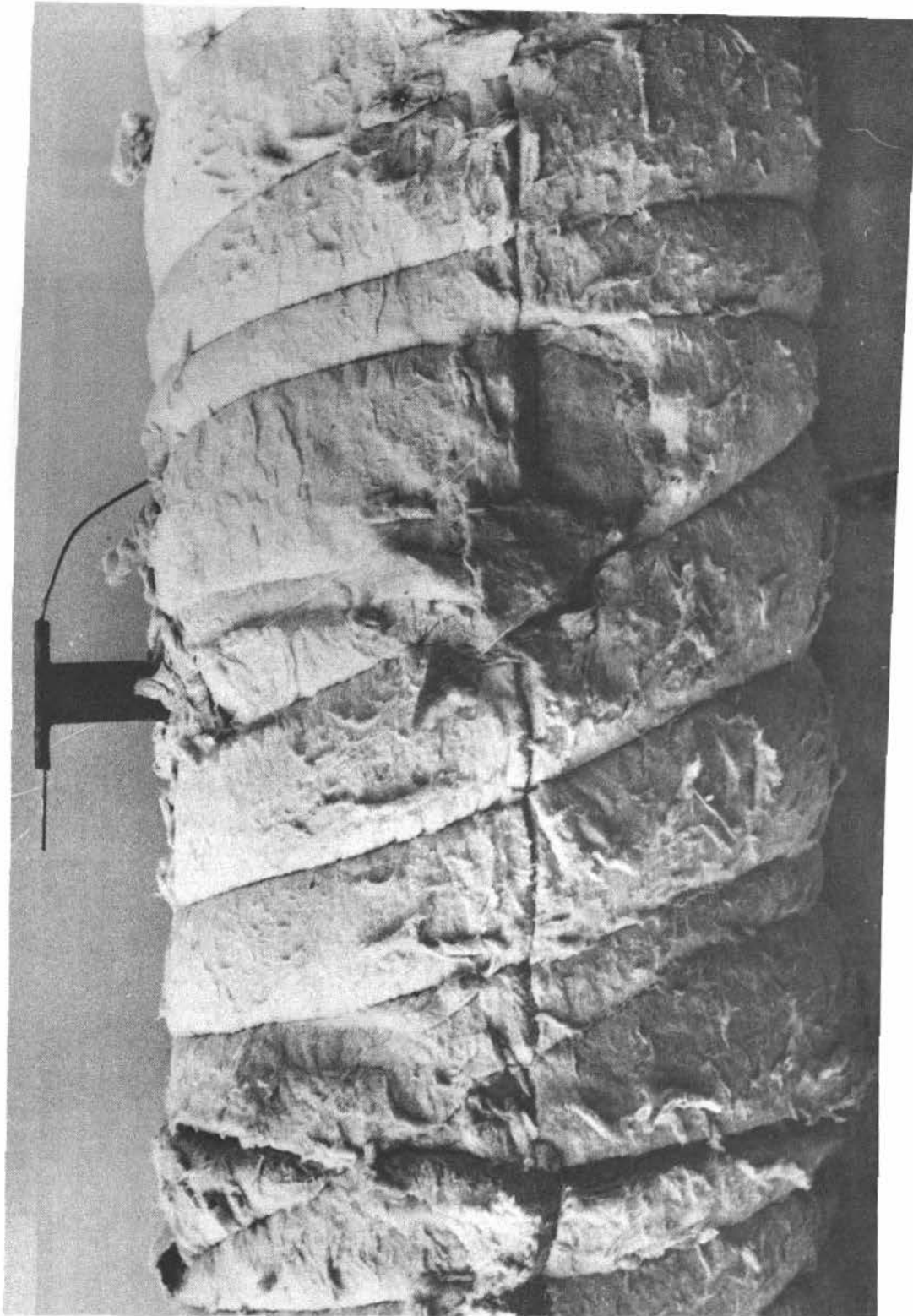


Foto 5: Mit Fiberfrax umhülltes Gasführungsrohr und Thermoelement mit Halter zur Bestimmung der Temperatur im Reaktor D-1

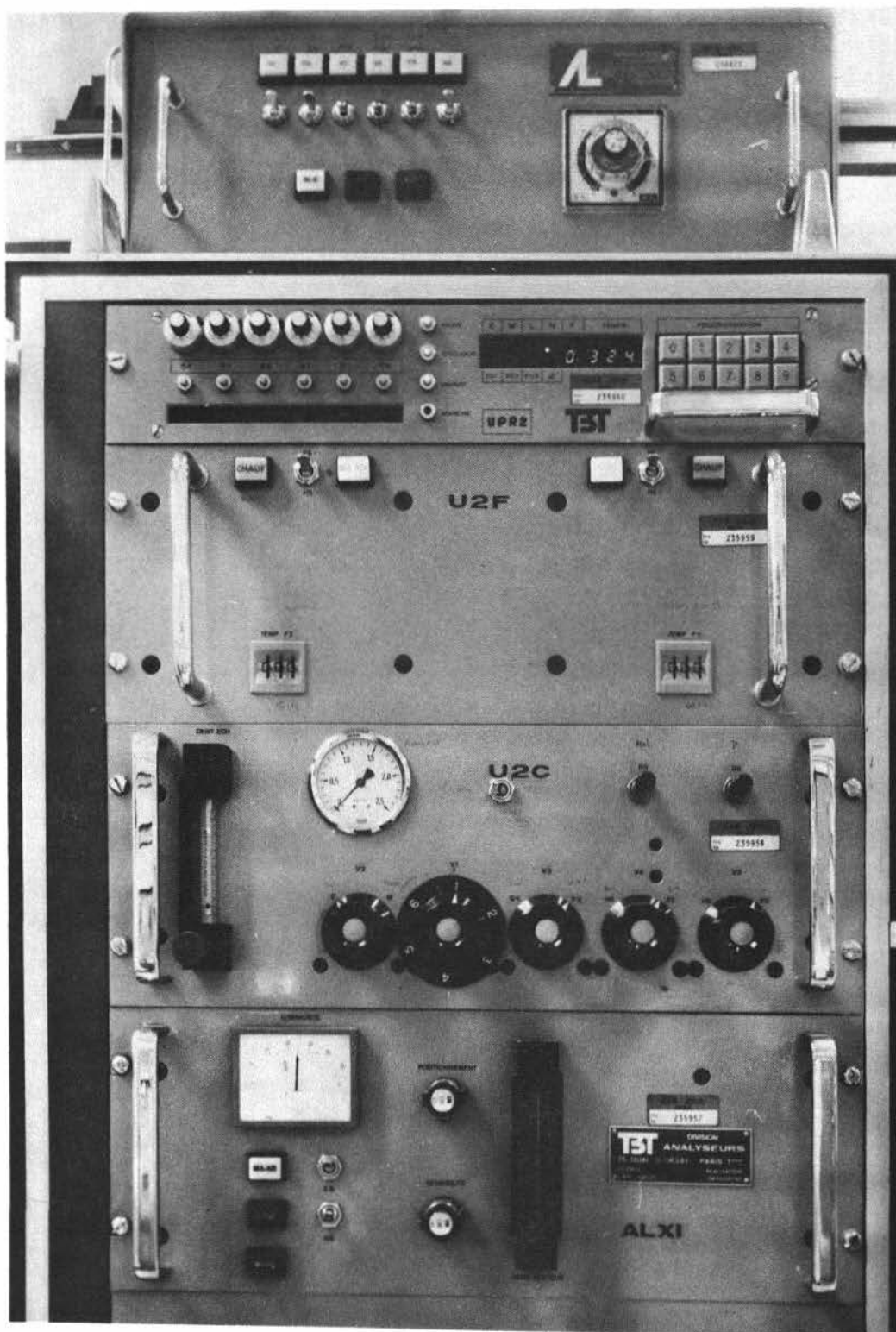


Foto 6:

Der Gaschromatograph

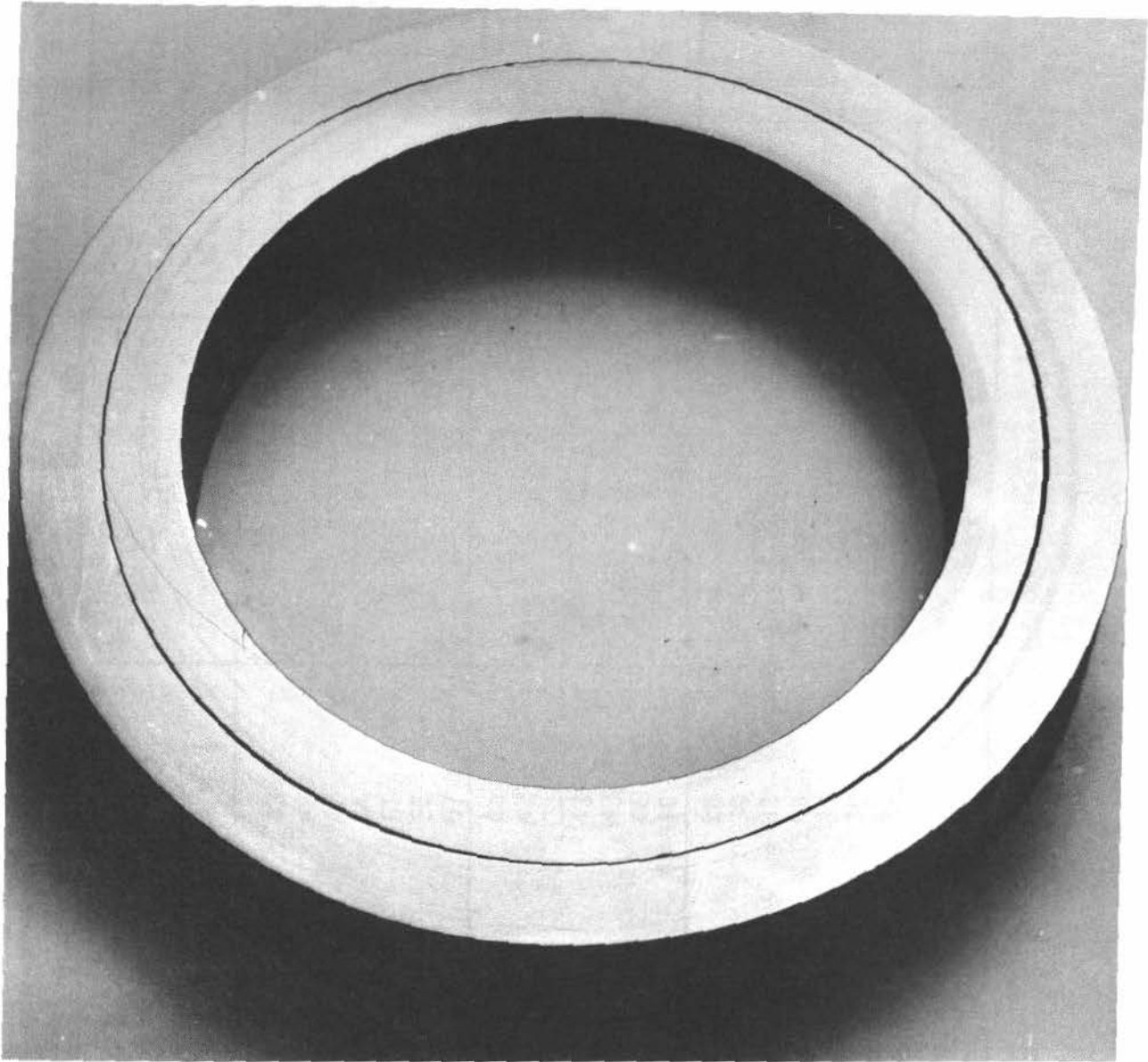


Foto 7: Ein Segment des DUPLEX-Rohres mit kleinen Spaltweiten

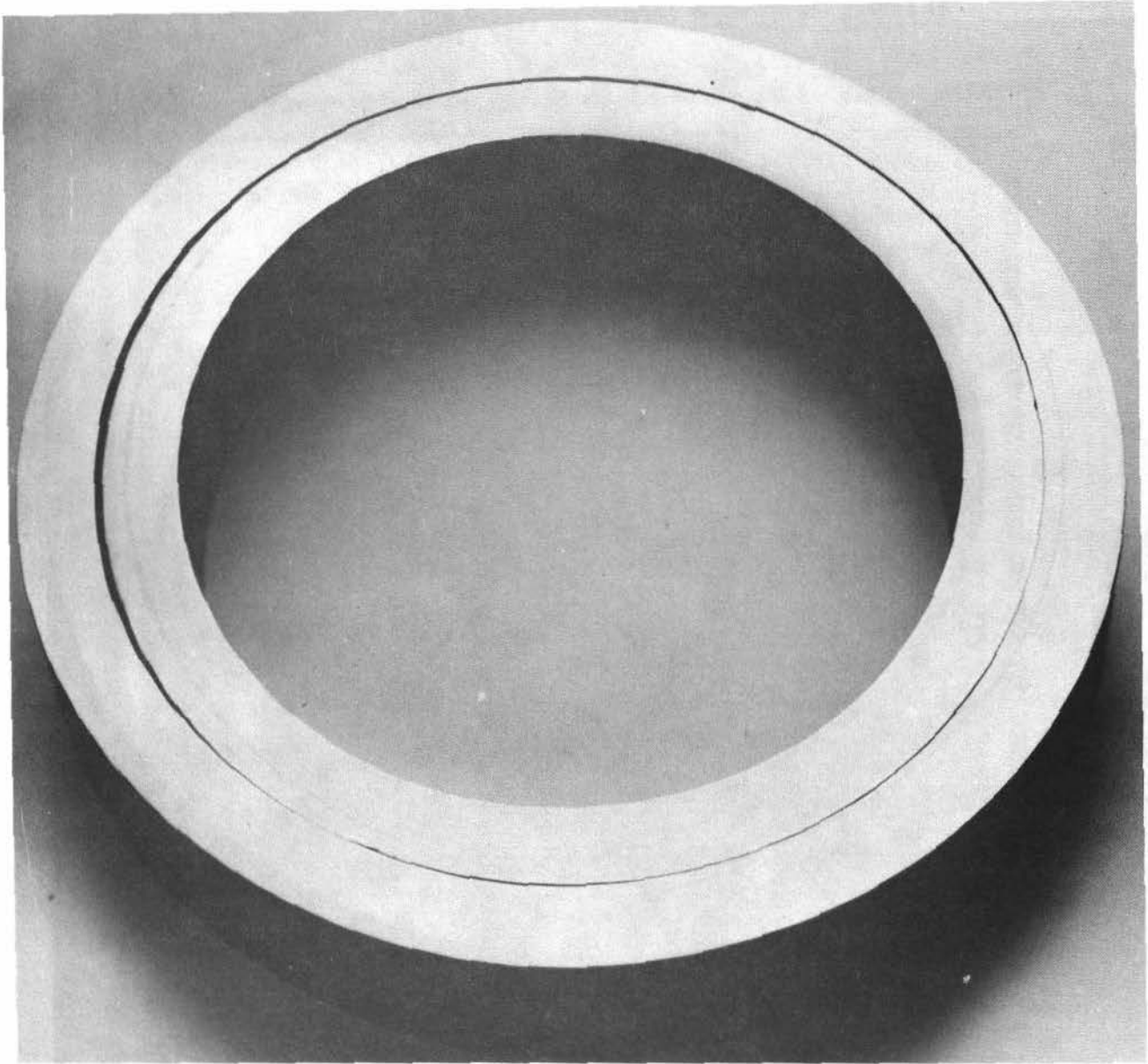


Foto 8: Ein Segment des DUPLEX-Rohres mit großen Spaltweiten

MP	ΔT_{Spalt} [grad]	\dot{q}_{He} ¹⁾ [kW/m ²]	ΔT_{Spalt} für $\dot{q}_{\text{He}} = 50 \text{ kW/m}^2_i$	α_{Spalt} [W/m ² K]	Mittelwert	
Ebene 2	476 475 473 478 471 472 477	33 40 42 47 48 52 52	43 48 47 54 51 55 57	32 34 37 35 39 39 38	1300 1200 1130 1150 1060 1070 1100	1150
Ebene 3	476 475 478 473 477 471 472	25 27 29 34 35 36 39	40 42 38 43 43 46 46	26 27 31 33 34 32 35	1610 1530 1300 1270 1210 1260 1180	1340
Ebene 4	478 475 477 476 472 473 471	18 21 23 26 31 31 31	28 39 33 40 38 39 41	27 22 29 27 34 33 31	1570 1900 1440 1540 1250 1230 1310	1460
1) \dot{q}_{He} hier bezogen auf $D_{\text{Spalt}} = 109,6 \text{ mm}$						

Tabelle 1: Temperaturabfälle, Wärmestromdichten und Wärmeübergangszahlen im DUPLEX-Rohrspalt

Gas-Chromatograph:	Deutsche L'AIR LIQUIDE
Detektor:	AL 11 - Heliumdetektor
Trennsäulen:	U2CS-Spezial-Gaskreislauf
Säule A:	Typ C02 P0, Länge 2 m
	Füllung: Poropak
Säule B:	Typ C04 TM, Länge 4 m
	Füllung: Molekularsieb
Trennsäulenöfen:	Typ U2F mit 2 Trennsäulenöfen
	Jeder Ofen ist separat elektronisch regelbar von $30 - 200\text{ }^{\circ}\text{C} \pm 0,1\text{ }^{\circ}\text{C}$
Automatikteil:	UPR2 mit Signalverarbeitung zum Steuern der Funktionen: Spülen, Messen, Nullkorrektur, Papiervorschub, Starten des Integrators, Steuern des Probenwählers und Verarbeitung von 6 verschiedenen Meßsignalen
Probenwähler:	Typ UCV6 mit 6 Meßstellen
Trägergas:	Helium N60
Probenvolumen:	1 bzw. 2 cm^3
Datenerfassung:	Integrator der Firma Spectra-Physics Typ System I

Tab. 3 : Daten des Gaschromatographen

Fortsetzung Tabelle 4

xx	xx	10) Einbau in der EVA I an Luft
		11) Versuchsbeginn mit N ₂ im Rohr und He im Spalt
x	x	12) O ₂ -Einspeisung in den Spalt (92 Nl) <u>Danach oxidierte spaltseitige Oberflächen</u>
	x	13) Prozeßgas-Betrieb und Helium-Spaltspülung mit H ₂ -Einspeisung und O ₂ -Einspeisung
x	x	
x	x	
xx	xx	14) Nach der 1. Versuchsreihe Ausbau des Duplex-Rohres und Katalysatorwechsel (an Luft)